### PCT

# WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM Internationales Büro

INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation 6:

C08H 5/04, C08B 5/00, C02F 1/28, B01J 20/24 (11) Internationale Veröffentlichungsnummer:

WO 99/28372

A1

(43) Internationales
Veröffentlichungsdatum:

10. Juni 1999 (10.06.99)

(21) Internationales Aktenzeichen:

PCT/DE98/03504

(22) Internationales Anmeldedatum:

27. November 1998 (27.11.98)

(30) Prioritätsdaten:

197 53 196.2 198 50 286.9 1. Dezember 1997 (01.12.97) 30. Oktober 1998 (30.10.98)

DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): EISU INNOVATIVE GESELLSCHAFT FÜR TECHNIK UND UMWELTSCHUTZ MBH [DE/DE]; Chemiepark Bitterfeld, Gebäude 26.09.0, Hauptstrasse 4, D-06766 Wolfen (DE).

(72) Erfinder; und

- (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): PIESCHEL, Friedemann [DE/DE]; Greppiner Strasse 10, D-06766 Wolfen (DE). LANGE, Eckehard [DE/DE]; Kiefernweg 28, D-06846 Dessau (DE). CAMACHO, Juan [DE/DE]; Greppiner Strasse 10, D-06766 Wolfen (DE). FIESELER, Christine [DE/DE]; Radegaster Strasse 76, D-06780 Zörbig (DE). IKIER, Hendrik [DE/DE]; Strasse der Chemiearbeiter 47, D-06766 Wolfen (DE).
- (74) Anwalt: TRAGSDORF, Bodo; Heinrich-Heine-Strasse 3, D-06844 Dessau (DE).

(81) Bestimmungsstaaten: AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GE, GH, HU, IL, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TI, TM, TR, TT, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZW, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

#### Veröffentlicht

Mit internationalem Recherchenbericht. Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche zugelassenen Frist; Veröffentlichung wird wiederholt falls Änderungen eintreffen.

> Translation from German - murbed up

- (54) Title: BIOSORBENTS AND PROCESS FOR PRODUCING THE SAME
- (54) Bezeichnung: BIOSORBENTIEN UND VERFAHREN ZU DEREN HERSTELLUNG

#### (57) Abstract

A process is disclosed for producing biosorbents by phosphorylation of cellulose-containing materials with phosphoric acid or ammonium phosphate in the presence of urea. Also disclosed are biosorbents with particular good use properties. Biosorbents of this type are used, in particular, for removing heavy metals from aqueous solutions. Proceeding from the disadvantages of the known prior art, purification costs of resultant raw products should be lowered and the formation of unwanted soluble organic polymer phosphates as by-products should be prevented. The biosorbents should have an improved mechanical strength and very good use properties. The disclosed biosorbents contain 5-10 % phosphorus and 1-4 % nitrogen in the form of carbamide groups. The synthesis mixture is mixed with elementary sulphur before starting the reaction in order to produce biosorbents with an increased mechanical strength. The proposed procedure allows reducing the otherwise customary reaction temperatures by about 40 °C.

#### (57) Zusammenfassung

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von Biosorbentien durch Phosphorylierung cellulosehaltiger Materialien mit Phosphorsäure oder Ammoniumphosphat in Gegenwart von Harnstoff. Ferner bezieht sich die Erfindung auf Biosorbentien mit besonders guten anwendungstechnischen Eigenschaften. Biosorbentien dieser Art werden insbesondere zur Entfermung von Schwermetallen aus wässrigen Lösungen eingesetzt. Ausgehend von den Nachteilen des bekannten Standes der Technik soll der Reinigungsaufwand für die erhaltenen Rohprodukte gesenkt und die Bildung von unerwünschten löslichen organischen polymeren Phosphaten als Nebenprodukte verhindert werden. Die Biosorbentien sollen eine verbesserte mechanische Festigkeit und sehr gute anwendungstechnische Eigenschaften aufweisen. Es werden Biosorbentien vorgeschlagen, bei denen der Phosphorgehalt 5 bis 10 % und der Stickstoffgehalt 1-4 % beträgt und der stickstoff in Form von Carbamidgruppen vorliegt. Das Synthesegemisch wird zur Herstellung von Biosorbentien mit einer erhöhten mechanischen Festigkeit vor Reaktionsbeginn mit elementarem Schwefel versetzt. Die vorgeschlagene Verfahrensweise ermöglicht eine Reduzierung der ansonsten üblichen Reaktionstemperaturen um ca. 40 °C.

### LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
ΑZ	Aserbaidschan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco `	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GB	Georgien	MD	Republik Moldan	TG	Togo
ВВ	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BB	Belgien	GN	Guinea	MIK	Die ehemalige jugoslawische	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland		Republik Mazedonien	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	ML	Mali	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IB	Irland	MIN	Mongolei	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MIR	Mauretanien	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MW	Malawi	US	Vereinigte Staaten von
CA	Kanada	<b>IT</b>	Italien	MX	Mexiko		Amerika
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CG	Kongo	KB	Kenia	NL	Niederlande	VN	Vietnam
СН	Schweiz	KG	Kirgisistan	NO	Norwegen	YU	Jugosławich
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik	NZ	Neusceland	ZW	Zimbabwe
СМ	Kamerun		Korea	PL	Polen		•
CN	China	KR	Republik Korea	PT	Portugal	•	
CU	Kuba	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
cz	Tschechische Republik	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
DE	Deutschland	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DK	Dänemark	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
EE	Estland	LR	Liberia	SG	Singapur		
].							

WO 99/28372 PCT/DE98/03504

1

#### **Beschreibung**

#### Biosorbentien und Verfahren zur deren Herstellung

5

Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von Biosorbentien durch Phosphorylierung celluslosehaltiger Materialien mit Phosphorsäure oder Ammoniumphosphat in Gegenwart von Harnstoff. Ferner bezieht sich die Erfindung auf Biosorbentien mit besonders guten anwendungstechnischen Eigenschaften. Biosorbentien dieser Art werden insbesondere zur Entfernung von Schwermetallen aus wäßrigen Lösungen eingesetzt.

Aus der DE 42 39 749 C2 ist ein Verfahren zur Herstellung von phosphoryliertem Holz 15 bekannt. Holzmehl mit einer Körnung von 0,05 bis 3 mm wird mit Phosphorsäure. Wasser und Harnstoff zu einem Brei verrührt und ca. 1 Stunde bei etwa 80 °C angetrocknet. Das so erhaltene Reaktionsgemisch wird auf ca. 170 °C etwa 70 min lang erhitzt, anschließend mit heißem Wasser gewaschen, bis die Waschflüssigkeit farblos erscheint und getrocknet. In einer alternativen Ausführungsform des Verfahrens wird 20 auch die Verwendung von Ammoniumphosphat an Stelle von Phosphorsäure beschrieben. Das anfallende Reaktions- bzw. Rohprodukt muß anschließend von Phosphatresten und farbigen Verunreinigungen befreit werden. Die Reinigungsstufen sind sehr zeitaufwendig und wirken sich nachteilig auf die Kosten des Endproduktes aus. Gemäß dem in der DE 42 39 749 beschriebenen Reinigungsprozeß ist das 25 Rohprodukt so lange mit heißem Wasser zu waschen, bis die Waschflüssigkeit farblos erscheint. Das dann vorliegende Produkt wird mit Natronlauge gewaschen und abschließend erneut bis zur Farblosigkeit des Filtrats gewaschen und getrocknet. Ein weiterer Nachteil dieses Verfahrens ist der sehr hohe Aufwand an Phosphorsäure bzw. Phosphat sowie Harnstoff. Die Umsetzung bei 170 °C innerhalb der genannten 30 Zeitdauer ist sehr energieaufwendig, führt zur Bildung von intensiv gefärbten dunklen Verunreinigungen und Zersetzungsprodukten von Holzbestandteilen, die nachträglich wieder mit ausgewaschen werden müssen. Außerdem erfordert der zur Erzielung einer befriedigenden Sorptionskapazität angestrebte hohe Phosphorgehalt im Sorbens den Einsatz eines hohen Überschusses an Phosphorsäure bzw. Phosphat sowie Harnstoff. 35 Deshalb ist bei der Reinigung des Rohprodukts mit einer starken Belastung der Waschwässer zu rechnen, wodurch h h Ents rgungskosten entstehen. In d r DE-OS 23 57 696 ist ein Verfahren beschrieben, bei dem u.a. cellul sehaltiges

Material mit Phosphorsäure im Gewichtsverhältnis Ph sphorsäure zu rganischem

Material v n 0,25 : 1 bis 2,0 : 1 gemischt wird, das Gemisch bei Temperaturen v n 160 bis 600 °C gebrannt und anschließend mit Wasser gewaschen und zu einem Pulver getrocknet wird.

Der Nachteil dieses Verfahrens besteht vor allem in einer geringen Ausbeute an

Adsorptionsmittel. Außerdem werden mit diesem Adsorptionsmittel nur
unzureichende Sorptionsergebnisse erzielt. Bekanntlich wird Cellulose durch starke
Säuren relativ schnell abgebaut. Der alleinige Zusatz der Phosphorsäure führt zu
unerwünschten Nebenreaktionen, die die Ursache für die vorgenannten Nachteile
bilden.

- Aus der WO 95/02452 ist ein Verfahren zur Herstellung von Sorbentien aus polysaccharidhaltigen Rohstoffen bekannt, bei dem diesen Modifizierungsmittel oder Gemische dieser Mittel zugesetzt werden und eine thermische Behandlung bei Temperaturen bis zu 600 °C vorgenommen wird. Gemäß den Ausführungsbeispielen kann ein Gemisch aus Orthophosphorsäure, Dimethylformamid und Harnstoff als
   Modifizierungsmittel dienen. Das Gemisch wird mit dem cellulosehaltigen Material bei 150 °C zwei Stunden lang gekocht. Anschließend wird filtriert, der feste Rest mit destilliertem Wasser bis zum Neutralwert der flüssigen Phase gewaschen, der
- Die Durchführung der Phosphorylierung in Dimethylformamid erweist sich jedoch wegen des Aufwandes bei der Abtrennung und Rückführung dieses bekanntlich nicht unproblematischen Lösungsmittels als nachteilig. Außerdem erfordert dieses Verfahren relativ große Einsatzmengen an Harnstoff. Die so hergestellten Sorbentien auf der Basis cellulosehaltiger Rohstoffe, wie Zuckerrübenschnitzel und Pilzmyzelien, weisen ungünstige mechanische Eigenschaften auf, die eine Anwendung in den

Rückstand getrocknet und zerkleinert.

- 25 bekanntlich sehr effektiven Adsorbersäulen ausschließen. Zudem zeigen die Produkte Sorptionsleistungen, die sowohl hinsichtlich Kapazität als auch Festigkeit nicht die von phosphorylierten Cellulosen übertreffen.
  - Auch aus der RU-2096082 C1 ist es bekannt, daß das phosphorylierte Rohprodukt einer aufwendigen Reinigung unterzogen werden muß.
- Trotz der aufwendigen Reinigungsoperationen der bekannten Verfahren sind die erhaltenen Biosorbentien nicht frei von löslichen phosphorhaltigen Verunreinigungen. Dabei handelt es sich um organische polymere Phosphate, die durch Auswaschprozesse nicht vollständig entfernt werden können. Diese Nebenprodukte können im Endprodukt nur schwer nachgewiesen werden. Sie lassen sich z.B. durch starkes
- 35 Ansäuern ihrer Lösung ausflocken und ergeben die bekannte Phosphatreaktion mit Amm niummolybdat und Salpetersäure erst nach längerer Zeit in der Siedehitze. Aufgrund ihrer Struktur sind diese Nebenprodukte gute Komplexbildner und beeinträchtigen dabei die Sorption von Schwermetallen am Biosorbens. Ein weiterer

Nachteil der bekannten gattungsgemäßen Bioserbentien besteht in deren geringer mechanischer Belastbarkeit. Bei hohen Strömungsgeschwindigkeiten kann es zu Verdichtungen der Sorbenspackung kommen, die bis zur vollständigen Blockade des Austausch-bzw. Reinigungsprozesses führen können.

- Bedingt durch die geringe mechanische Belastbarkeit der Biosorbentien werden diese nach der Reinigung schwammartig und die Oberfläche der Partikel ist mit feinen Fasern bedeckt, die beim bestimmungsgemäßen Einsatz der Biosorbentien in Austauschersäulen bereits bei geringer mechanischer Belastung abgerieben und ausgeschwemmt werden.
- Dadurch werden die zu reinigenden Lösungen getrübt und über die mitausgeschwemmten Faserbestandteile werden auch zu adsorbierende Bestandteile ausgetragen. Dies ist ein erheblicher qualitativer Mangel der bekannten Biosorbentien.
- Der Erfindung lag die Aufgabe zugrunde, die bekannten Verfahren zur Herstellung von Biosorbentien auf der Basis cellulosehaltiger Materialien durch Phosphorylierung mit Phosphorsäure oder Ammoniumphosphat in Gegenwart von Harnstoff so zu verbessern, daß der Reinigungsaufwand für die erhaltenen Rohprodukte erheblich gesenkt werden kann, die Bildung von unerwünschten löslichen organischen polymeren Phosphaten als Nebenprodukte verhindert wird und Biosorbentien mit einer erhöhten mechanischen Festigkeit erhalten werden.

  Ferner sollen Biosorbentien erhalten werden, die sich durch sehr aute anwendungs-
  - Ferner sollen Biosorbentien erhalten werden, die sich durch sehr gute anwendungstechnische Eigenschaften auszeichnen, insbesondere für den Einsatz in Adsorbersäulen geeignet sind und einen geringen Herstellungsaufwand erfordern.
- 25 Erfindungsgemäß wird die Aufgabe durch die im Anspruch 1 angegebenen Merkmale gelöst. Geeignete Ausgestaltungsvarianten sind in den Ansprüchen 2 bis 14 angegeben. In den Ansprüchen 15 und 16 sind Biosorbentien mit besonders guten anwendungstechnischen Eigenschaften definiert.
- Wesentlich ist, daß vor Reaktionsbeginn der Reaktionsmischung oder einer der
  Reaktionskomponenten elementarer Schwefel zugesetzt wird. Der elementare
  Schwefel kann entweder mit dem cellulosehaltigen Material oder dem
  Phosphorylierungsmittel, Phosphorsäure bzw. Ammoniumphosphat, oder dem
  Harnstoff vermischt werden oder dem Reaktionsgemisch zugegeben werden. Beim
  Einsatz von Phosphorsäure kann der Schwefel auch in die Phosphorsäure dispergiert
  werden. Wesentlich ist, daß die Zugabe des elementaren Schwefels vor Erreichen der

erforderlichen Reaktionstemperatur erf lgt ist. Wird das Reaktions- bzw. Synthesegemisch vor der Reaktion unter Vakuum getrocknet, so kann der elementare Schwefel

auch nach Beendigung des Trocknungsprozesses dem Synthesegemisch zugesetzt

werden. Die Einsatzmengen an elementarem Schwefel sind abhängig v n der Einsatzmenge an cellulosehaltigem Material und sollten, bezogen auf die Einsatzmenge an cellulosehaltigem Material, 0,1 bis 10 %, vorzugsweise 0,5 bis 2 %, betragen. Die Zugabeform des elementaren Schwefels ist für den Erfolg des Verfahrens ohne 5 Bedeutung. Der Schwefel kann in gemahlener Form, in Schuppenform oder durch Aufsprühen von geschmolzenem Schwefel zugegeben werden. Wichtig ist, daß während der Umsetzung der Ausgangskomponenten, cellulosehaltiges Material, Harnstoff und Phosphorsäure oder Ammoniumphosphat, elementarer Schwefel zugegen ist. Die sich während der Umsetzung bildenden Reaktionsgase enthalten 10 keinen Schwefelwasserstoff oder Mercaptane. Durch die Einsatzmenge an Schwefel sollte das herzustellende Biosorbens nicht übermäßig belastet werden, da dann beim Einsatz der Biosorbentien mit einer Abgabe von feinteiligem Schwefel zu rechnen ist. Aus diesem Grund sollte die Einsatzmenge an elementarem Schwefel nicht über 10 %, bezogen auf die Einsatzmenge an cellulosehaltigem Material, liegen. Die untere 15 Einsatzgrenze für die erforderliche Schwefelmenge ist abhängig von der Art des cellulosehaltigen Materials und sollte jedoch nicht unter 0,1 % liegen. Überraschenderweise zeigte sich, daß bei der Herstellung von Biosorbentien aus cellulosehaltigem Material durch Phosphorylierung mit Phosphorsäure oder Ammoniumphosphat und in der Gegenwart von Harnstoff sowie der Zugabe von elementarem Schwefel, die Bildung organischer polymerer Phosphate als Nebenprodukte nahezu vollständig unterdrückt wird. Der Schwefelzusatz führt außerdem zu Biosorbentien mit einer höheren mechanischen Festigkeit, die sich vor allem beim Einsatz der Biosorbentien als Schüttung in Säulen für Austausch- oder Extraktionsprozesse sehr vorteilhaft auswirkt. Durch die relativ glatte Oberfläche der einzelnen Sorbenspartikel erhält die Schüttung als solche eine wesentlich verbesserte mechanische Stabilität, so daß sich höhere Strömungsgeschwindigkeiten der zu behandelnden Flüssigkeiten nicht nachteilig auf die Sorbensschüttung und die Sorptionsleistung auswirken. Infolge der nicht mehr vorhandenen organischen polymeren Phosphate im Rohprodukt der Biosorbentien können der Reinigungsaufwand und vor allem auch der Verbrauch an Wasser erheblich gesenkt werden. Der zugesetzte elementare Schwefel hat nach Abschluß der Reaktion und der Reinigung des Rohproduktes beim nachfolgenden Einsatz der Biosorbentien keinen nachteiligen Einfluß auf die

Sorptionskapazität und die Sorptionsgeschwindigkeit. Infolge der nicht mehr vorhandenen löslichen organischen polymeren Phosphate wird das Sorptionsverhalten bei zu reinig inden Lösungen mit niedrigen Metallkonzentrati inen

K nkurrenzreaktion zur Sorption am festen Sorbens entfällt.

verbessert, da di Bildung löslicher Komplexverbindungen mit den Phosphaten als

Wenn besonderes harte Sorbenspartikel hergestellt werden sollen, s ist es empfehlenswert, als cellulosehaltige Reaktionskomponente bereits körniges Material einzusetzen.

Beim Einsatz von harzhaltigem Cellulosematerial, wie z.B. Nadelholzgranulat, tritt durch den Zusatz von elementarem Schwefel noch der Vorteil ein, daß die Bildung von Harzseifen erheblich reduziert wird. Dadurch wird eine nahezu blasenfreie Füllung von Extraktionsapparaten, die Schüttungen von erfindungsgemäß hergestelltem Biosorbentien aus diesen Materialien enthalten, erreicht. Außerdem tritt bei der Herstellung der Biosorbentien noch der Nebeneffekt auf, daß mit den Reaktionsgasen keine harzigen Bestandteile kondensieren und dadurch die Wartung der Reaktionsanlage vereinfacht wird. Der als Nebenprodukt in geringem Maße sublimierende Schwefel läßt sich leicht abwaschen.

Durch eine weitere Ausgestaltung des Verfahrens gemäß den im Anspruch 5 angegebenen Merkmalen, werden Biosorbentien erhalten, die sich zudem noch durch hervorragende anwendungstechnische Eigenschaften, insbesondere durch sehr hohe Sorptionsleistungen auszeichnen.

Das cellulosehaltige Ausgangsmaterial wird vor der Phosphorylierungs- und Carbamidierungsreaktion in eine besonders reaktionsfähige Form gebracht. Diese sogenannte Aktivierung erfolgt durch Einstellen eines Feuchtigkeitsgehaltes des cellulosehaltigen Materials auf einen Wert von 30 bis 60 %, insbesondere durch Zugabe von Wasser. Das cellulosehaltige Ausgangsmaterial hat üblicherweise bereits einen Wassergehalt von 5 bis 25 %. Um die gewünschte Aktivierung zu erreichen, ist es erforderlich, daß das cellulosehaltige Material über einen Zeitraum von mindestens einer Stunde der Einwirkung von Wasser ausgesetzt wird. Die Zeitdauer ist im wesentlichen abhängig vom bereits vorliegenden Feuchtigkeitsgehalt des Materials. Die Reaktionspartner Phosphorylierungsmittel und Harnstoff müssen in das cellulosehaltige Material so eingemischt werden, daß diese nach Beendigung des Mischprozesses gleichmäßig verteilt vorliegen. Neben der erwähnten Aktivierung ist besonders auf eine gleichmäßige Verteilung der Reaktionspartner in dem

30 -cellulosehaltigen Material zu achten

Zugabe der Reaktionspartner besteht nicht, wobei jedoch eine getrennte Zugabe, erst Phosphorylierungsmittel und dann Harnstoff, bevorzugt werden sollte, da der Mischprozeß jeweils bei Raumtemperatur erfolgen kann und bei Einhaltung dieser Reihenfolge Sorbentien mit besonders guten anwendungstechnischen Eigenschaften erhalten wurden.

Die Aktivierung kann insbesondere bei Verwendung trockener cellulosehaltiger Materialien mit einem Wassergehalt von ca. 10 % oder darunter vorteilhaft mit dem

\* Coll

\* Ty Vermischen mit Harnstoff und/oder Ph sphoryli rungsmittel k mbiniert werden. Aus den zuzusetzenden Mengen an Harnstoff und/oder Phosphorylierungsmittel und der für die Aktivierung vorbestimmten Wassermenge wird gegebenenfalls unter Erwärmen bis auf eine Temperatur von 60 °C eine klare Lösung dieser Komponenten gebildet, die an Stelle von Wasser zur Aktivierung des cellulosehaltigen Materials eingesetzt wird. Das cellulosehaltige Material sollte dabei vorher auf die Temperatur der Lösung erwärmt werden. Während der Aktivierungszeit muß jedoch darauf geachtet werden, daß kein Wasserverlust eintritt.

10

Ein wesentlicher Verfahrensschritt besteht darin, daß vor der eigentlichen Phosphorylierung und Carbamidierung die im Reaktionsgemisch noch vorhandene Feuchtigkeit
nahezu vollständig ausgetrieben wird. Dies erfolgt durch Erhitzen des Gemisches auf
Temperaturen von 60 bis 100 °C und gleichzeitigem Anlegen von Vakuum. Erst wenn
das Wasser abdestilliert ist, darf die nachfolgende Phosphorylierungs- und
Carbamidierungsreaktion eingeleitet werden, die ebenfalls unter Vakuum durchgeführt
wird.

Die Durchführung dieser Reaktion unter Vakuum führt zu einer Reihe von entscheidenden Vorteilen. Von großer Bedeutung ist die Absenkung der nach bisher bekannten Verfahren notwendigen Reaktionstemperatur um etwa 40 °C. Die Reaktionstemperaturen können somit auf 125 bis 145 °C reduziert werden. Demzufolge werden Nebenreaktionen von Phosphorylierungsmittel und Harnstoff deutlich vermindert sowie Zersetzungsreaktionen der cellulosehaltigen Materialien unterdrückt. Dadurch ist es möglich, die Einsatzmengen der Reaktionskomponenten Harnstoff und Phosphorylierungsmittel zu verringern. Außerdem werden eine Verbesserung der Produktfarbe, der Stabilität der Sorbenspartikel und eine erhebliche Verringerung des

Reinigungsaufwandes für die Sorbenspartikel erreicht.
 Infolge der niedrigen Reaktionstemperaturen und der geringen Einsatzmengen an Phosphorylierungsmittel und Harnstoff wird eine schonende Behandlung des celluslosehaltigen Materials während der Durchführung der Phosphorylierung und Carbamidierung gewährleistet. Dadurch bleiben die Strukturen und mechanischen
 Eigenschaften der cellulosehaltigen Materialien bei der Umsetzung zum Sorbens

weitgehend erhalten. Ausgehend von dem jeweiligen cellulosehaltigen Ausgangsmaterial kann somit deren späterer Verwendungszweck bestimmt werden. So werden z.B. Sorbenspartikel auf der Basis von Holz, die besonders hart und kompakt sind, bevorzugt für die Sorption in Säulen eingesetzt. Für eine batchweise Sorption sind

35 hingegen flockige und weichere Sorbenspartikel, wie z.B. auf der Basis von Rübenschnitzel der Gerstenstroh, besser geeignet.

Für die Herstellung der Sorbentien ist es wichtig, Reaktionszeiten von mindestens einer Stunde einzuhalten. Bei geringeren Reaktionsz iten wird das ingesetzte

Phosphorylierungsmittel unv Ilständig umgesetzt, und insbes ndere ist der Stickstoffgehalt zu niedrig. Weiterhin hat sich herausgestellt, daß nach zu langen Reaktionszeiten, d.h. oberhalb vier Stunden, die Sorptionskapazität deutlich nachläßt, wobei offensichtlich die bekannten Kondensationsreaktionen der Phosphatgruppen untereinander zu Diphosphaten usw. ablaufen.

Ein Vergleichsversuch zur Herstellung der erfindungsgemäßen Sorbentien ohne cellulosehaltiges Material hat keine schwer in Wasser löslichen Stoffe ergeben, so daß kein Anlaß zu der Vermutung besteht, daß durch Nebenreaktionen wasserunlösliche Harmstoffkondensate mit sorptiven Eigenschaften dem Sorbens anhaften und die Ergebnisse verfälschen.

Nach Beendigung der Reaktionszeit wird das Reaktionsprodukt in an sich bekannter Weise auf Normaltemperatur abgekühlt, und die Verunreinigungen werden ausgewaschen. Als Phosphorsäure kann jede beliebige technische Qualität, insbesondere die handelsübliche 85 %ige, eingesetzt werden. Harnstoff eignet sich vorzugsweise in prillierter Form, jedoch ist auch jede andere technische Handelsware geeignet.

Versuche zeigten, daß der Einsatz von größeren Mengen Phosphorsäure und damit das Anstreben eines höheren Phosphorgehaltes als angegeben bei Zugabe einer im vorgeschlagenen Verhältnis gesteigerten Menge Harnstoff zu schlechteren Sorbentien mit zu geringerm Stickstoffgehalt und weiterhin zu mangelhafter Stabilität der Sorbentien infolge übermäßigen Quellens führt. Bei geringerem Einsatz an Phosphorsäure nimmt die Kapazität der Sorbentien entsprechend ab. Eine überproportionale Steigerung des Harnstoffeinsatzes führt zu keinen veränderten Produkten, aber zu einer zusätzlichen Belastung der Waschwässer durch unumgesetzten Harnstoff. Eine Verringerung des Harnstoffeinsatzes unterhalb des angegebenen Molverhältnisses führt zu einer Minderung der Sorptionsleistungen trotz ausreichender

führt zu einer Minderung der Sorptionsleistungen trotz ausreichender Phosphorylierungsgrade, bzw. bei drastischer Senkung zusätzlich zu unzureichender Ausnutzung des eingesetzten Phosphorylierungsmittels, d.h. zu geringeren Phosphorylierungsgraden.

Entsprechend der vorgeschlagenen Verfahrensweise führen deutlich geringere Einsatzmengen an Harnstoff und Phosphorylierungsmittel zu Sorbentien mit hoher Sorptionsleistung. Dies war nach den Erkenntnissen aus dem bekannten Stand der Technik nicht zu erwarten. Im Vergleich zu den ansonsten üblichen Einsatzmengen an Harnstoff und Phosphorylierungsmittel können diese um ca. die Hälfte reduziert werden, wobei Biosorbentien mit hervorragenden Eigenschaften erhalten werden. Die geringen Einsatzmengen führen neben iner Reduzierung der Kosten n ch zu einem geringeren Aufwand für die Beseitigung der Abprodukte aus den Waschwässern bei der Reinigung der S rbenspartikel.

Als cellulosehaltige Materialien komm in alle Naturstoffe mit Cellulose als Stützsubstanz in Frage, wie die verschiedensten Hölzer, aber auch ausgelaugte Zuckerrübenschnitzel, Stroh und Sonnenblumenkernspelzen. Für die Umsetzung zu den erfindungsgemäßen Sorbentien ist es wichtig, die beim fertigen Sorbens erwünschte Körnung durch entsprechendes Zerkleinern des cellulosehaltigen Materials bereits vor der anschließenden Aktivierung zu erzeugen. Die Zerkleinerung auf eine Teilchengröße von 0,2 bis 4,0 mm erfolgt z.B. mittels Schneidmühlen. Die unterschiedlichen cellulosehaltigen Materialien mit ihrer vielgestaltigen Faserstruktur, Dichte und

10 Die für die Durchführung des erfindungsgemäßen Verfahrens geeigneten cellulosehaltigen Materialien weisen üblicherweise einen Wassergehalt von ca. 5 bis 25 % auf. Die Feuchtigkeit dieser Materialien wird für die Aktivierung auf einen Gehalt von 30 bis 60 % gebracht, z.B. durch Zugabe von Wasser. Als Ausgangsmaterialien können auch Gemische aus verschiedenen cellulosehaltigen Materialien eingesetzt werden.

Festigkeit erweitern die Einsatzgebiete der daraus gewinnbaren Sorbentien.

- Nach der vorgeschlagenen Verfahrensweise können auch Biosorbentien hergestellt werden, die einen Gehalt an Phosphor in Höhe von 5 bis 10 % und an Stickstoff in Höhe von 1 bis 4 % aufweisen, und bei denen der Stickstoff in Form von Carbamidgruppen vorliegt.
- Diese zeichnen sich im Vergleich zu bekannten Biosorbentien, die ausgehend von anderen Einsatzmengen an Phosporylierungsmittel und Harnstoff erhalten werden, und bei denen der Stickstoff nicht in Form von Carbamidgruppen vorliegt, durch sehr gute Sorptionseigenschaften aus. Infolge der in den Biosorbentien vorliegenden funktionellen Phosphatgruppen und Carbamidgruppen weisen diese sehr hohe Sorptionsleistungen auf, wobei Sorptionskapazitäten von bis zum 6 meq/g für verschiedene Schwermetalle erreicht werden konnten sowie eine hohe Festigkeit der Bindung der Schwermetalle, wie die in den Beispielen nachgewiesenen Gleichgewichtsdaten belegen. Als Ursache wird ein Synergismus durch die gebildeten Phosphatester- und Carbamidgruppen vermutet. Innerhalb der angegebenen Bereiche
- 30 hinsichtlich der Sorptionsleistungen ermittelt.
  Für den Einsatz dieser Biosorbentien in Adsorbersäulen, wo besonders hohe
  Anforderungen an die mechanische Belastbarkeit der Sorbensschüttung gestellt
  werden, ist es erforderlich, daß dem Synthesegemisch vor dem Reaktionsbeginn
  elementarer Schwefel zugesetzt wird.

der Stickstoff- und Phosphorgehalte wurde ein Optimum der Biosorbentien

35 Die Erfindung umfaßt auch Biosorbentien, an die keine besonders hohen Anf rderungen an die Sorpti nsl istung gestellt werden, die aber eine h he mechanische Belastbarkeit aufw isen sollen. Diese S rbentien, bei denen der 9

Stickstoff nicht in F m von Carbamidgruppen v rliegt, erhält man durch Zugabe v n elementarem Schwefel zu dem Synthesegemisch vor Reaktionsbeginn.

#### 5 Beispiele

#### A Herstellung der Biosorbentien als Rohprodukt

#### 10 Beispiel 1

100g Pappelholz-Sägespäne in einer Siebfraktion von 0,5 bis 2 mm und mit einem Wassergehalt von 11 % werden mit 5 g elementarem Schwefel in Pulverform versetzt und in eine Lösung von 446 g Harnstoff in 848 ml Phosphorsäure (85 %ig) und 100 ml Wasser eingetragen und vermischt. Der entstandene dünne Brei wird auf Porzellanschalen so verteilt, daß eine ca. 1 cm hohe Schicht vorliegt. Die Porzellanschalen mit der aufgetragenen Reaktionsmischung werden in einem belüfteten Trockenschrank 1 Stunde bei einer Temperatur von 80 °C getrocknet. Danach wird die Reaktionsmischung erneut durchmischt und die Porzellanschalen werden mit VA-Blechen abgedeckt und in den Trockenschrank weiterbehandelt, wobei in dem Trockenschrank ein schwacher Stickstoffstrom zugeführt wird. Innerhalb einer Stunde wird die Temperatur im Trockenschrank auf die Reaktionstemperatur von 165 °C erhöht und über einen Zeitraum von 1,5 Stunden aufrechterhalten. Nach diesem Zeitraum ist die Reaktion beendet und das erhaltene Biosorbens-Rohprodukt wird abgekühlt.

25

#### Beispiel 2

Wassergehalt von 12 % werden mit einer Siebfraktion von 2 bis 5 mm und mit einem Wassergehalt von 12 % werden mit einer 90 °C heißen Lösung von 94,1 g Ammonium-dihydrogenphosphat und 135 g Harnstoff in 75 ml Wasser eingetragen und vermischt. Das Gemisch wird 2 Stunden in einem geschlossenen Behälter aufbewahrt und anschließend in einen 2l-Kolben gegeben, der an einen Labor-Rotationsverdampfer angeschlossen ist. Das Gemisch wird bei einer Temperatur von 90 °C und einem angelegten Vakuum v n 30 Torr g rührt, so lange bis kein Wasser abdestilliert. Danach werden 18 g Schw felpulver zugesetzt und intensiv mit dem Reaktionsgemisch vermischt. Anschließend wird unter Beibehaltung d s Vakuums und weiterem

10

Rühren die Temperatur auf 145 °C erhöht. Die Reakti nstemperatur wird über eine Zeitdauer von 2,5 Stunden aufrechterhalten. Nach Abklingen der anfänglichen lebhaften Gasentwicklung, nach einer Reaktionsdauer von 2,5 Stunden, ist die Umsetzung abgeschlossen. Das erhaltene Biosorbens-Rohprodukt wird abgekühlt.

Beispiel 3

5

100 g Fichtenholzmehl mit einer Körnung von 0,4 bis 1,25 mm und einem Wasser-10 gehalt von 11 % wird mit einer Menge von 1 g elementarem Schwefel in Pulverform versetzt und bei Raumtemperatur in einem verschließbaren Behälter mit 50 ml Wasser übergossen und vermischt. Anschließend wird der Behälter zwei Stunden lang geschlossen gehalten. Nach Abschluß der Aktivierung beträgt der Wassergehalt des Fichtenholzmehles 41 %. Danach wird dem aktivierten Fichtenholzmehl 50,2 ml 85%ige 15 Phosphorsäure (8,26 Mol/kg Holz) langsam zugetropft und während einer Zeitdauer von 30 min mit dem Holzmehl gemischt. Nach diesem Mischvorgang wird dem Gemisch 148,2 g prillierter Harnstoff (3,35 Mol/Mol Phosphorsäure) zugesetzt und weitere 30 min lang gemischt. Danach wird das feuchte, rieselfähige Gemisch in einen Labor-Rotationsverdampfer (21-Kolben) gegeben, ein Vakuum von 30 Torr angelegt und mittels eines Ölbades unter ständigem Rühren auf eine Temperatur von 90 °C erhitzt, solange bis kein Wasser mehr abdestilliert. Unter Aufrechterhaltung des angelegten Vakuums und weiterem Rühren wird das wasserfreie Gemisch auf eine Reaktionstemperatur von 135 °C erhitzt und diese Temperatur während des Mischprozesses beibehalten. Die einsetzende Gasentwicklung klang nach 1½ Stunden ab 25 und der Reaktionsprozeß wurde beendet. Das Rohprodukt wurde anschließend abgekühlt.

#### Beispiele 4 bis 13

30

Es wurde ausgehend von verschiedenen cellulosehaltigen Materialien analog wie im Beispiel 3 verfahren, wobei jedoch die Ausgangskomponenten und die Verfahrensparameter wie folgt verändert wurden.

### a) Ausgangsk mponenten

Bsp.	celluloseh.	Wassergehalt	H <sub>3</sub> PO <sub>4</sub> (	85 %ig)	Hamstoff	
	Ausgangsmat.	(%)	(ml)	Molzahi <sup>1)</sup>	(g)	Molverh. 2
3	F3	11	50,2	8,26	148,2	3,35
4	F1	28	58,5	11,9	154,2	3,0
5	F2	28	25,0	5,1	99,1	4,5
6	F3	11	51,6	8,5	149,8	3,3
7	F3	11	50,2	8,26	110,3	2,0
8	F3	11	50,2	8,26	132,3	3,0
9	F3	11	50,2	8,26	176,4	4,0
10	P3	22	63,9	12,0	196,6	3,5
11	B4	10	55,3	9,0	194,4	4,0
12	R5	12	36,0	6,0	110,9	3,5
13	G2	14	35,2	6,0	77,4	2,0

5

### cellulosehaltiges Ausgangsmaterial:

#### Körnung in mm:

	•	
	F = Fichtenholz	1 = 1,0 - 2,0
10	P = Pappelholz	2 = 0,2 - 1,0
	B = Buchenholz	3 = 0,4 - 1,25
	R = Rübenschnitzel	4 = 0,2 - 0,8
	G = Gerstenstroh	5 = 0,2 - 2,0
	1)	•

1) Mol H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> je kg celluslosehaltigem Material

15 2) Mol Harnstoff je Mol H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>

#### b) Verfahrensparameter

Beispiel	Aktivieru	ng		Trockn	Trocknung		Reaktion		
	Zugabe	Zeitdauer	Wasser-	Temp.	Vakuum	Temp.	Vakuum	Zeitdauer	
	H₂O (ml)	(h)	gehalt (%)	(°C)	(Ton)	(°C)	(Torr)	(h)	
3 ,	50,0	2	41	90	30	135	30	1,5	
4	75,6	1	59	70	50	125	50	1,0	
5 .	5,9	3	32	80	200	140	200	4,0	
6	74,5	2	49	90	100	140	100	2,1	
7	50,9	2	41	70	40	130	40	1,1	
8	50,9	2	41	80	25	130	25	1,9	
9	50,9	2	41	90	150	140	150	3,3	
10	32,2	3	41	90	30	125	30	4,0	
11	38,5	3	35	90	35	125	35	3,1	
12	120,0	1	60	80	70	135	70	2,6	
13	24,6	1	31	90	110	140	110	1,1	

#### 5

### **Vergleichsbeispiele**

### Vergleichsbeispiel 1

10

Es wird analog wie im Beispiel 1 ein Biosorbens-Rohprodukt, jedoch ohne Zugabe von Schwefel, hergestellt.

### 15 Vergleichsbeispiel 2

Es wird analog wie im Beispiel 2 ein Biosorbens-Rohprodukt, jedoch ohne Zugabe von Schwefel, hergestellt.

#### Vergleichsbeispiel 3

Es wird analog wie im Beispiel 3 ein Biosorbens-Rohprodukt, jedoch ohne Zugabe von Schwefel, hergestellt.

5

#### Vergleichsbeispiel 4

Es wird analog wie im Beispiel 3 verfahren, lediglich ohne Zugabe von Schwefel und mit einer Änderung der zugesetzten Mengen an Phosphorsäure und Harnstoff. Im Vergleich zum Beispiel 3 wurden die 2,5 fache Menge an Phosphorsäure, 125 ml (entspricht 20,65 Mol H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> je kg Trockenmasse des Fichtenholzes) und die 2,5 fache Menge an Harnstoff, 370,5 g (entspricht 8,375 Mol/ Mol H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>) zugesetzt.

15

#### Vergleichsbeispiel 5

Es wurde analog Beispiel 5 verfahren, lediglich mit einer Änderung der zugesetzten Menge an Phosphorsäure. Diese betrug 19,6 ml (entspricht 4,0 Mol H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub> je kg

Trockenmasse Fichtenholz).

#### Vergleichsbeispiel 6

25 Es wurde analog Beispiel 7 verfahren, lediglich mit einer Änderung der zugesetzten Menge an Harnstoff. Diese betrug 66,2 g, was einem Molverhältnis Hamstoff zu Phosphorsäure von 1,5 : 1 entspricht.

#### 30 B Reinigung des Rohproduktes

Die gemäß den Beispielen 1 bis 3 sowie den Vergleichsbeispielen 1 bis 3 hergestellten Biosorbens-Rohprodukte werden zur Extraktion der Nebenprodukte wie folgt behandelt.

Die abgekühlten Rohprodukte werden mit 1 l Wasser angerührt und blasenfrei in eine mit Wasser gefüllte, für säulenchromatographische der I nenaustauschpr zesse übliche Glassäule mit einem Durchmesser v n 8 cm und einer Höhe von 20 cm gegeben. Über dem Bodenauslauf ist ine ebene Siebplatte angebracht. Der

Flüssigkeitsstand der Säule wird durch Höhenverstellung des mit dem Bodenauslauf verbundenen Überlaufs reguliert. Die Sorbensschüttung in der Säule ist 12 cm hoch. Durch Aufgeben eines gleichmäßigen Wasserstromes von 150 ml/h wird das Rohprodukt gereinigt. In definierten Zeitabständen werden an dem Überlauf Proben des Reinigungswassers abgenommen und auf den Nachweis von Phosphaten untersucht. Der Nachweis erfolgt nach der an sich üblichen Methode mittels Ammoniummolybdat und Salpetersäure bei Siedetemperatur. Der Phosphatnachweis für die verschiedenen Biosorbentien führte zu folgenden Ergebnissen:

Beispiel	Probennahme nach	Verbrauch an	Phospatnachweis
	einer	Reinigungswasser	
	Extraktionsdauer von	(in Litern)	
	(in Stunden)		
1	8	1,2	Gelbfärbung
	10	1,5	negativ
2	10	1,5	schwache Gelbfärbung
•	12	1,8	negativ
3	10	1,5	negativ
Vergleichs-			
beispiel			
1	10	1,5	gelber Niederschlag
	20	3,0	gelbe Trübung
	30	4,5	leichte Gelbfärbung
2	30	4,5	Gelbfärbung
	40	6,0	schwache Gelbfärbung
3	10	1,5	gelber Niederschlag
	20	3,0	gelbe Trübung
	30	4,5	gelbe Trübung
	40 .	6,0	Gelbfärbung
	50	7,5	schwache Gelbfärbung

<sup>10</sup> 

15 Wie die Ergebnisse zu Vergleichsbeispiel 3 eindeutig belegen, ist das Bi sorbens nach einer Reinigungsdau r von 50 Stunden noch erheblich mit Phosphaten belastet, was

<sup>&</sup>quot;negativ" bedeutet, daß kein Phosphat mehr nachweisbar ist.

sich in der noch vorhandenen Gelbfärbung beim Ph sphatnachweis im Reinigungswassers ausdrückt. Zu vergleichenden Untersuchungen werden "gereinigte"
Biosorbenspartikel gemäß Vergleichsbeispiel 3 aus der Säule entnommen und in
einem Behälter mit 300 ml Wasser und 100 ml 1N NaOH angerührt. Anschließend
werden die Biosorbenspartikel zur Fortführung des Extraktionsprozesses wieder in die
Glassäule gefüllt und die Reinigung durch Zugabe von weiteren 5i Wasser in der
eingangs beschriebenen Art und Weise fortgesetzt und entsprechende Proben des
Reinigungswassers entnommen und der Phosphatnachweis durchgeführt. Dabei
wurden folgende Ergebnisse erzielt:

10

Probennahme nach einer	Verbrauch an	Phospatnachweis
Extraktionsdauer von	Reinigungswasser	
(in Stunden)	(in Litern)	
10	1,5	Gelbfärbung
20	3,0	schwache Gelbfärbung
30	4,5	schwache Gelbfärbung

Diese Ergebnisse zeigen, daß selbst durch eine Behandlung der Biosorbentien mit Natronlauge keine vollständige Entfernung der löslichen organischen polymeren Phosphate erreicht werden konnte.

Da bisher noch keine genormte Prüfmethode für eine mechanische Festigkeitsprüfung von Biosorbentien existiert, und es letztendlich in der Praxis auf die mechanische Belastbarkeit der Sorbensschüttung ankommt, wird folgende an sich übliche Prüfmethode durchgeführt.

Aus den mit den Biosorbentien gefüllten Glassäulen wird nach Abschluß der Reinigungsstufen das Wasser aus der Säule abgelassen und durch Anlegen eines Vakuums von 250 Torr während einer Zeitdauer von 30 min die Sorbensschüttung tropffrei gesaugt. Anschließend wird die Höhe der Sorbensschüttung gemessen und die Sorbenspackung auf Rißbildung untersucht.

Die so erhaltenen Ergebnisse stellen eine zuverlässige Aussage über die mechanische Belastbarkeit der Sorbensschüttung und die mechanische Festigkeit der Sorbenspartikel dar. Die erzielten Ergebnisse sind folgende:

٠.	Höh der S rbens in der Säule (in cr	•	Rißbildung der S rbens- packung nach der Vakuum- behandlung
Beispiel	vor der Vakuum- behandlung	nach der Vakuum- behandlung	
1	12	11	keine
2	14	12	keine
3	12	11	keine
Vergleichs- beispiel			
1 .	17	13	geringe Rißbildung
2	18	12	geringe Rißbildung
3	16	11	deutliche Rißbildung

Wie die Vergleichsbeispiele belegen, wird durch die Zugabe elementaren Schwefels die Bildung von löslichen organischen polymeren Phosphaten in den Biosorbentien unterdrückt und die hergestellten Biosorbentien weisen im Vergleich zu den ohne Schwefelzusatz erhaltenen Biosorbentien eine deutlich verbesserte mechanische Festigkeit auf.

Die gemäß den Beispielen 3 bis 13 und den Vergleichsbeispielen 4 bis 6 hergestellten
Biosorbentien wurden in folgender Ausbeute und Trockengehalt mit jeweiligen
Gehalten an P und N erhalten:

#### C Eigenschaften der Endprodukte

Beispiel	Ausbeute	Trockengehalt	Gehalt	
	(g)	(%)		
			P (%)	N (%)
3	423,6	33,4	7,7	1,3
4	327,0	38,2	10,0	1,0
5	363,6	29,7	6,0	4,0
6	435,5	32,1	7,8	2,1
7	416,8	34,0	7,9	1,1
8	420,8	31,3	5,0	1,9
9	359,0	40,2	9,1	3,3
10	341,9	38,7	9,9	4,0
11	351,8	41,3	8,2	3,1
12	671,1	9,7	6,8	2,6
13	548,0	12,7	5,0	1,1
Vergleichs- beispiel				
4	401,7	40,4	14,2	0,1
5	363,5	28,8	4,1	4,2
6	389,4	35,5	7,0	0,4

Die gemäß den Beispielen 3 bis 13 und den Vergleichsbeispielen 4 bis 6 hergestellten Biosorbentien wurden nachfolgend auf ihre Sorptionseigenschaften untersucht.

Die Bestimmung der Sorptionsgleichgewichtsdaten erfolgte nach folgender Methode: 250 ml Maßkolben wurden mit den feuchten Sorbensproben (0,1 bis 0,025 g Trockensubstanz) und jeweils 1 bis 5 ml m/10 Lösungen von Salzen der Metalle Cu, Cd oder Pb beschickt, aufgefüllt, mit Magnetrührstab versehen und 3 Stunden bei Zimmertemperatur gerührt. Nach dem Absitzen wurden die Lösungen dekantiert, ihr pH bestimmt und komplexometrisch ihr Metallgehalt ermittelt. Aus den so erhaltenen Gleichgewichtskonzentrationen in der Lösung und der durch die Zugabe von Metallsalzlösungen festgelegten Ausgangskonzentrationen wurden di Gleichgewichtsk nzentrationen am S rbens errechnet. Durch Zugabe entsprech nder Mengen Salpetersäure v r dem Auffüllen der Maßkolben wurde pH = 3 bei der S rpti n

ingestellt. Mehrere K ntrollmessung n der Gleichgewichtsk nzentrati n n in der Lösung mittels Atomabsorptionsspektroskopie (AAS) ergaben Abweichungen im Bereich der Meßgenauigkeit und bestätigten so die Verläßlichkeit komplexometrischer Analysen bei den Sorptionsuntersuchungen.

5 Die für die einzelnen Sorbentien ermittelten Sorptions-Kapazitäten sind in der nachfolgenden Tabelle angegeben.

Die Festigkeit der Sorption wurde an Hand der Gleichgewichtsdaten bei niedrigen Gleichgewichtskonzentrationen (unter 10 mg/l) in der Lösung bestimmt (ebenfalls bei Zimmertemperatur und pH 3). Zur besseren Übersichtlichkeit der Daten wurde der an sich übliche metallspezifische Gleichgewichtskoeffizient K<sub>Ne</sub> nach der Formel

$$K_{Ma} = C_S / C_1$$

berechnet.

Dabei ist C<sub>s</sub> die Gleichgewichtsmetallkonzentration im Sorbens in mg/g und C<sub>1</sub> die Gleichgewichtskonzentration an Metall in der Lösung in mg/l.
 Die errechneten Ergebnisse sind ebenfalls in der nachfolgenden Tabelle angegeben.

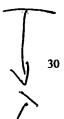
Beispiel	Kapazität	Festigkeit als	K <sub>Me</sub> (I/g)	
	(meq/g)	Kcu	K <sub>Cd</sub>	K <sub>Pb</sub>
-				, .
3	5,3	38,6	126,2	62,6
4	5,6	32,1	90,6	40,9
5	4,7	41,8	133,7	69,8
6	5,1	40,1	120,4	63,3
7	4,9	35,3	122,8	61,9
8	5,0	31,2	118,1	58,4
9	5,1	45,1	139,3	71,3
10	5,5	43,0	140,9	59,6
11	5,1	37,5	125,4	65,2
12	4,5	20,7	80,9	39,2
13	4,6	18,9	76,0	39,1
V4	5,1	2,5	6,2	10,3
V5	3,6	11,2	24,6	19,9
V6	3,9	5,2	25,7	19,3

Die Sorptionsergebnisse zeig n, daß im V rgl ich zu den bisher üblich n Einsatzmengen bei einem um ca. 50 % geringeren Einsatz an Phosphorsäure und Harnstoff eine lonenaustauschkapazität von 4,5 bis 5,6 meg/g erreicht werden konnte. Die unteren Werte wurden bei Sorbentien auf der Basis von Rübenschnitzel bzw.

- 5 Gerstenstroh ermittelt, die ausgehend von ihrer Materialstruktur geringere Kapazitäten aufweisen.
  - Hinsichtlich der berechneten Gleichgewichtskoeffizienten  $K_{\text{ME}}$  für die Metalle Cu, Cd oder Pb wurden gemäß den erfindungsgemäßen Beispielen sehr gute Ergebnisse erzielt, die erheblich besser sind als die Festigkeitswerte der bekannten Sorbentien.
- Die Vergleichsbeispiele belegen, daß bei Einsatzmengen der Reaktionspartner Phosphorsäure und Harnstoff, die außerhalb der erfindungsgemäßen liegen, wesentlich schlechtere Sorptionseigenschaften, vor allem hinsichtlich der Festigkeit erzielt werden.

#### **Patentansprüche**

- Verfahren zur Herstellung von Biosorbentien, insbesondere zur Entfernung von Schwermetallen aus wäßrigen Lösungen, durch Phosphorylierung celluslosehaltiger Materialien mit Phosphorsäure oder Ammoniumphosphat in Gegenwart von Harnstoff, wobei das Reaktionsgemisch auf die erforderliche Reaktionstemperatur erwärmt und nach Beendigung der Reaktionsdauer auf Normaltemperatur abgekühlt wird und die Verunreinigungen ausgewaschen werden,
   dadurch gekennzeichnet, daß vor Reaktionsbeginn der Reaktionsmischung oder einer der Reaktionskomponenten elementarer Schwefel zugesetzt wird.
- Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß der elementare
   Schwefel in Mengen von 0,1 bis 10 %, bezogen auf die Einsatzmenge an cellulosehaltigem Material, zugegeben wird.
  - 3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß der elementare Schwefel in Einsatzmengen von 0,5 bis 2 % zugegeben wird.
- 20 4. Verfahren nach Anspruch 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß der elementare Schwefel vor Erreichen einer Temperatur der Reaktionsmischung von 110 °C zugegeben wird.
- Verfahren, insbesondere nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekenn zeichnet, daß die Phosphorylierung nach folgenden Verfahrensschritten durchgeführt wird:



- a) Aktivierung des cellulosehaltigen Materials, indem dieses auf einen
   Feuchtigkeitsgehalt von 30 bis 60 % eingestellt wird und dieser w\u00e4hrend einer
   Zeitdauer von mindestens einer Stunde aufrechterhalten wird,
- b) Zugabe des Phosphorylierungsmittels in einer Menge von 6 bis 12 Mol je kg wasserfreiem cellulosehaltigem Material,
- Zugabe von Harnstoff in einem M Iverhältnis zum Phosph rphorylierungsmittel v n 2,5:1 bis 4,5:1,

- d) Vermischen der Komp nenten Harnst ff und Phosphorphorylierungsmittel mit dem aktivierten cellulosehaltigen Material, solange bis die Komponenten gleichmäßig verteilt sind,
- e) Verdampfen der in dem gemäß den Verfahrensschritten a) bis d) gebildeten
   Gemisch enthaltenen Feuchtigkeit durch Erhitzen des Gemisches auf eine
   Temperatur von 60 bis 100 °C bei gleichzeitigem Anlegen eines Vakuums,
- f) Durchführung einer Phosphorylierung und Carbamidierung durch Erhitzen des
  Gemisches auf eine Temperatur von 125 bis 145 °C bei gleichzeitigem Anlegen
  eines Vakuums unter Einhaltung einer Reaktionszeit von ein bis vier Stunden
  und
  - g) Abkühlung des Reaktionsproduktes auf Normaltemperatur und Auswaschen der Verunreinigungen.
  - Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß zur Aktivierung des cellulosehaltigen Materials diesem eine vorbestimmte Menge an Wasser zugesetzt wird.

5

15

20

- 7. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 oder 6, dadurch gekennzeichnet, daß dem aktivierten cellulosehaltigen Material zuerst das Phosphorylierungsmittel zugesetzt und gleichmäßig verteilt wird und anschließend der Harnstoff.
- 8. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, daß die Mischzeiten zum Einmischen des Phosphorylierungsmittels und des Harnstoffes jeweils mindestens 15 min betragen.
- 9. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, daß die Reaktionskomponenten Phosphorylierungsmittel und Harnstoff bei Raumtemperatur mit dem cellulosehaltigen Material vermischt werden.
- 10. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, daß das Phosphorylierungsmittel und/oder der Harnstoff mit der zur Aktivierung bestimmten Wassermenge vermischt werden und die so erhaltene Lösung zur Aktivi rung mit dem cellul sehaltigen Material vermischt wird.

 $\mathcal{T}_{1}$ 

11. Verfahren nach Anspruch 10, dadurch gekennzeichnet, daß das Vermischen des Phosphorylierungsmittels und/oder des Harnstoffes mit dem Wasser unter Erwärmen auf Temperaturen bis zu 60 °C durchgeführt wird.

T/2 \bigg\{ 5

12. Verfahren nach einem der Ansprüche 10 oder 11, dadurch gekennzeichnet, daß das cellulosehaltige Material vor der Aktivierung auf die Temperatur der Lösung von Harnstoff und/oder Phosphorylierungsmittel in Wasser erwärmt wird.

TJ {10

 Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 12, dadurch gekennzeichnet, daß das angelegte Vakuum auf einen Wert von 50 bis 200 Torr eingestellt wird.

Try 25

20

25

14. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 13, dadurch gekennzeichnet, daß das cellulosehaltige Material vor dem Aktivieren auf eine Korngröße von 0,2 bis 4,0 mm zerkleinert wird.

- 15. Biosorbentien zur Entfernung von Schwermetallen aus wäßrigen Lösungen, bestehend aus mit Phosphorsäure oder Ammoniumphosphat sowie Harnstoff phosphorylierten cellulosehaltigen Materialien, dadurch gekennzeichnet, daß der Phosphorgehalt 5 bis 10 % und der Stickstoffgehalt 1 bis 4 % betragen und der Stickstoff in Form von Carbamidgruppen vorliegt.
- 16. Biosorbentien zur Entfernung von Schwermetallen aus wäßrigen Lösungen, bestehend aus mit Phosphorsäure oder Ammoniumphosphat sowie Harnstoff phosphorylierten cellulosehaltigen Materialien, dadurch gekennzeichnet, daß der Phosphorgehalt 5 bis 10 % und der Stickstoffgehalt 1 bis 4 % betragen und der Stickstoff in Form von Carbamidgruppen vorliegt, und das Synthesegemisch vor dem Reaktionsbeginn mit elementarem Schwefel versetzt ist.

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

PCT/DE 98/03504

		101,02 30	, , , , , , , , , , , , , , , , , , , ,			
A. CLASS IPC 6	HFICATION OF SUBJECT MATTER C08H5/04 C08B5/00 C02F1	/28 B01J20/24				
According	to International Patent Classification (IPC) or to both national cla	ssification and IPC				
	SEARCHED					
IPC 6	ocumentation searched (classification system followed by class COSH COSB	ification symbols)				
Documenta	tion searched other than minimum documentation to the extent	that such documents are included in the fields s	earched			
Electronic	lata base consulted during the international search (name of da	ta base and, where practical, search terms used	)			
	·					
C. DOCUM	ENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		·			
Category °	Citation of document, with indication, where appropriate, of the	ie relevant passages	Relevant to claim No.			
A	DE 42 39 749 A (MEISCH H. U.) cited in the application see claims	1 June 1994	1,5,15, 16			
A	US 2 964 416 A (W. T. GLAB) 13 December 1960					
,						
Furth	er documents are listed in the continuation of box C.	Patent family members are listed in	n annex.			
° Special cat	egories of cited documents :	"T" later document published after the inter				
conside	nt defining the general state of the art which is not ered to be of particular relevance	or priority date and not in conflict with t cited to understand the principle or the invention				
"L" docume	E* earlier document but published on or after the international filing date  "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone					
*O* docume	which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)  Of document referring to an oral disclosure, use, exhibition or document is combined with one or more other such document is combined with one or more other such document.					
other in "P" documen	eans nt published prior to the international filing date but an the priority date claimed	ments, such combination being obvious in the art. "&" document member of the same patent fa	s to a person skilled			
	ate of the actual completion of the international search  Date of mailing of the international search report					
21	21 April 1999 28/04/1999					
Name and m	ailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2	Authorized officer				
	NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3018	Mazet, J-F				

### INTERNATIONAL SEARCH REPORT

information on patent family members

Inter. Jonal Application No PCT/DE-98/03504-

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
DE 4239749 A	01-06-1994	NONE	
US 2964416 A	13-12-1960	NONE	**************************************

## INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

PCT/DF 98/03504

A. KLASPIZERING OPEN AMEL DIVISOR COSES/00 C02F1/28 B01J20/24  TPK 6 C08H5/04 C08B5/00 C02F1/28 B01J20/24  Recharacteristic State (Recommendation of Potendization (PK) oder nach der nationalen Klassdization und der IPK  B. RECHERCHERTE GEBIETE  Recharacteristic Miniciation (Reselfication (Reselfication und Klassdization seynobole)  IPK 6 C08H C08B  Recharacteristic Aber nacht zum Miniciation (Reselfication van Klassdization seynobole)  Recharacteristic aber nacht zum Miniciation Konsultierte existionische Daterbank (Name der Daterbank und owit, verwendets Suchfaegriffe)  William Amelia aber nacht zum Miniciationische Seinfaritischungen, soweit diese unter die nachtercheinen Gebeite fallen  William Amelia aber nacht zum Miniciationische Veröffendichungen von Angelbe der in Betracht immenden Teile  Betrachtung der Veröffendichung, soweit erfordertich unter Angelbe der in Betracht immenden Teile  Betrachtung der Veröffendichung erwähnt 16  1 Gerschnung der Veröffendichungen werden in der Angelbe der in Betracht immenden Teile  Betrachtung der Veröffendichungen zu der Ferindertichungen von Angelbe der in Betracht immenden Angelbe der in Betracht immenden Angelbe der in Betracht immenden Teile  A US 2 964 416 A (M. T. GLAB)  13. Dezember 1960  Welliere Veröffendichung der angelben int der Seiner der Ferindichungen werder in der Angelbe der in Betracht der Ferindichungen veröffendicht werden internationalen Anmeldedation veröffendichungen einer an der Profitischungen einer einer Seine Ansandracht veröffendichungen einer an der Profitischungen einer einer Seine Ansandracht veröffendichungen einer sollen der des veröffendichungen einer Angelbe der in Betrachtung ohn berendrachte Betrachtung von der nachte Maßelburhnen bewarden sollen der der seiner Angelbe der in Veröffendichungen einer Angelbe der in Veröffendichungen einer an der nachter Nechterischung von besondere Bedeutung der besondere Bedeutung der bereichte Veröffendichungen der Bedeutung der besondere Bedeutung der besondere Bedeutung der besondere Bedeutung d	IRK 6 C98H5/04 C98B5/00 C02F1/28 B01J20/24  Nach der Intiminationation Pedandidassatikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK  B. RECHERCHERTE GEBETTE Rechtercherten Managepotischer (Nasadikationesystem und Klassifikationesymbolis)  IRK 6 C98H C98B  Rechtercherte aber notit zum Mindestprüfster gehörende Varöfferdichungen, soweit diese ursar die rechtercherten Gebeite fallen  William der rintermationalen Rechterche korautisete einstitrunische Daterbank (Name der Daterbank und ent, verwendste Succhbegriffe)  C. ALS WESENTLUCH AMOESEHERE UMTERLAGEN  William vor der intermationalen Rechterche korautisete einstitrunische Daterbank (Name der Daterbank und ent, verwendste Succhbegriffe)  C. ALS WESENTLUCH AMOESEHERE UMTERLAGEN  Kalegons*  Bezeichnung der Veröffendichung, soweit erfordenfich unter Angabe der in Betracht sommenden Teile  Betr. Ansprüche  A DE 42 39 749 A (MEISCH H. U.) 1. Juni 1994  1, 5, 15, 16  18 Bezeichnung der Veröffendichung erwähnt siehe Ansprüche  A US 2 964 416 A (W. T. GLAB)  13. Dezember 1960  T. Seltere Veröffendichung, de den alspennenn Stand der richenk derivert, selben der versichen Stand der sentimenten Veröffendichungsbatum eren zuderen in Erkenbare zu Jassan. Oder durch de das Veröffendichungsbatum eren zuderen zu des prücht der des Veröffendichungsbatum eren zuderen zu der				7 03504		
Nach der Intermetionation Petronidisaarifkation (IPK) oder nach der rationalen Klassifikation und der IPK  B. RECHERCHERTE GEBIETE  IPK 6 COBH COBB  Procherchierte aber nucht zum Mindesprüfstoff (plassifikationsystein und Klassifikationssymbole)  Procherchierte aber nucht zum Mindesprüfstoff (plassifikationsystein und Klassifikationsystein und Klassifikationsystein und eine nuchte bestehnt von der Procherchierte aber nucht zum Mindesprüfstoff (plassifikationsystein)  Walthernd der Intermationalen Recherche konsullierte dielktronssche Daterbank (Rame der Daterbank und end. verwendets Suchbegriffe)  Walthernd der Intermationalen Recherche konsullierte dielktronssche Daterbank (Rame der Daterbank und end. verwendets Suchbegriffe)  Walthernd der Intermationalen Recherche konsullierte dielktronssche Daterbank (Rame der Daterbank und end. verwendets Suchbegriffe)  Weltzer Veröfferfülchungsn sind der Fortsatzung von Feld C zu  Weltzer Veröfferfülchungsn sind der Fortsatzung von Feld C zu  In der Anneil dung erwähnt 1 1,5,15,15,16  In der Anneil dung erwähnt 1 1,5,15,15,16  US 2 964 416 A (W. T. GLAB)  13. De zember 1960  Weltzer Veröfferfülchungs der Veröfferfülchungsn zur erstellte der Veröfferfülchungsn und der Fortsatzung von Feld C zu  Veröfferfülchung der Veröfferfülchungsn zur erstellte State Daterbank des jeden ersten der nech den internationalen Ammeldendatun veröfferfülcht der veröffer für der Veröfferfülchung von besondere Bedaufung die bezierpsundet Erfindung kann der Anneil der Veröfferfülchung von besondere Bedaufung der Veröfferfülchung von besondere Bedaufung der Veröfferfülchung von des einer Fortsatze Erfindung kann der Anneil der Veröfferfülchung von besondere Bedaufung der Veröfferfülchung von des einer Fortsatze Erfindung kann der Anneil der Veröfferfülchung von besondere Bedaufung der Veröfferfülchung von des einer Fortsatze Erfindung kann der Veröfferfülchung von besondere Bedaufung der Veröfferfülchung von des einer Fortsatze bedaufung der Veröfferfülchung von des einer Fortsatze Profiter von de	Melitere Veröffertlichungen sind der Fortsatzung von Feld C zu	A. KLASS IPK 6	IFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES CO8H5/04 CO8R5/00 CO2F1/2	8 R01.120/24			
B. RECHENCHIERTE GEBIETE  Recharchisoria abor nord 2 cm Mindestprüstori (Nasesthationasystem und Klasssificationasymbolis)  Recherchisoria abor nord 2 cm Mindestprüstorif gehörendas Veröfferdichungen, soweit diese unter die recherchisorian Gebiete Islam  Willheim der internationation Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evrit, verwenniste Suchbegriffe)  C. ALS WESENTLICH ANGESEHERE UNTERLAGEN  Kätegorie*  Bezochnung der Veröfferdichungen, soweit erforderlich unter Angabe der in Beitracht kommenden Tolle  Beit. Anspruch Nr.  A  DE 42 39 749 A (MEISCH H. U.) 1. Juni 1994  in der Anmel dung erwähnt siehe Ansprüche  A US 2 964 416 A (N. T. GLAB)  13. Dezember 1960  Westen Veröfferdichungen sind der Fortestzung von Feld C zu  Einsen Schumen, die den einigemeinen Veröfferdichungen  A Veröfferdichung des den einigemeinen Stand der Technet definiert, aber mitt alle besondere Bedockstam anzusehen ist Einsen Schumen die den einigemeinen Stand der Veröfferdichungen einer Felden der Veröfferdichungen einer Feröfferdichungen einer Veröfferdichung des veröffer einer Entstand unn veröffere feröffer werden ist auch einer m	Bencheronier Gebiere Recheronier Mindesprüfsborf (Dassiftstörresystem und Klassiftstörresymbole)  1/K 6 COBH COBH Roberthiere aber notit zum Mindesprüfsborf gehörende Veröffertlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiere tallen  Willhamm der Internationalen Recherche konzuläterte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und erd. verwenders Suchtbegriffe)  C. ALS WESENTUCH ANGESEHENE UNTERLAGEN  Kätisgorie*  Bezeichnung der Veröffertlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Tolle  Betr. Ansprüch Nr.  A  DE 42 39 749 A (METSCH H. U.) 1. Junn 1994  1,5,15, 11 der Anmeldung erwähnt siehe Ansprüche  A US 2 964 416 A (N. T. GLAB)  13. Dezember 1960  Wester Kategorien von angagebaren Veröffertlichungen: Anser rend als bezonden bedeitsbar antichsehen ist.  **Veröffertlichung, die pedem eine under nech dem internationalen  t. Veröffertlichung, die gesegne ist, einen Profitationangen bei der social nicht unter Angabe der in Betracht kommen erfortlichten veröffertlichungen den allgemeinen von angagebaren Veröffertlichungen:  A US 2 964 416 A (N. T. GLAB)  13. Dezember 1960  **Yerderrichtung, die den allgemeinen von der nech dem internationalen  t. Veröffertlichung, die gegegne ist, einen Profitationangen bei beziehen der Steren der ist social nicht unter ausgeglichn  Veröffertlichung die veröffertlichungen der Kategorie in Veröffertlichungen der	2710	00000,000 00211,2				
B. RECHENCHIERTE GEBIETE  Recharchisoria abor nord 2 cm Mindestprüstori (Nasesthationasystem und Klasssificationasymbolis)  Recherchisoria abor nord 2 cm Mindestprüstorif gehörendas Veröfferdichungen, soweit diese unter die recherchisorian Gebiete Islam  Willheim der internationation Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evrit, verwenniste Suchbegriffe)  C. ALS WESENTLICH ANGESEHERE UNTERLAGEN  Kätegorie*  Bezochnung der Veröfferdichungen, soweit erforderlich unter Angabe der in Beitracht kommenden Tolle  Beit. Anspruch Nr.  A  DE 42 39 749 A (MEISCH H. U.) 1. Juni 1994  in der Anmel dung erwähnt siehe Ansprüche  A US 2 964 416 A (N. T. GLAB)  13. Dezember 1960  Westen Veröfferdichungen sind der Fortestzung von Feld C zu  Einsen Schumen, die den einigemeinen Veröfferdichungen  A Veröfferdichung des den einigemeinen Stand der Technet definiert, aber mitt alle besondere Bedockstam anzusehen ist Einsen Schumen die den einigemeinen Stand der Veröfferdichungen einer Felden der Veröfferdichungen einer Feröfferdichungen einer Veröfferdichung des veröffer einer Entstand unn veröffere feröffer werden ist auch einer m	Bencheronier Gebiere Recheronier Mindesprüfsborf (Dassiftstörresystem und Klassiftstörresymbole)  1/K 6 COBH COBH Roberthiere aber notit zum Mindesprüfsborf gehörende Veröffertlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiere tallen  Willhamm der Internationalen Recherche konzuläterte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und erd. verwenders Suchtbegriffe)  C. ALS WESENTUCH ANGESEHENE UNTERLAGEN  Kätisgorie*  Bezeichnung der Veröffertlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Tolle  Betr. Ansprüch Nr.  A  DE 42 39 749 A (METSCH H. U.) 1. Junn 1994  1,5,15, 11 der Anmeldung erwähnt siehe Ansprüche  A US 2 964 416 A (N. T. GLAB)  13. Dezember 1960  Wester Kategorien von angagebaren Veröffertlichungen: Anser rend als bezonden bedeitsbar antichsehen ist.  **Veröffertlichung, die pedem eine under nech dem internationalen  t. Veröffertlichung, die gesegne ist, einen Profitationangen bei der social nicht unter Angabe der in Betracht kommen erfortlichten veröffertlichungen den allgemeinen von angagebaren Veröffertlichungen:  A US 2 964 416 A (N. T. GLAB)  13. Dezember 1960  **Yerderrichtung, die den allgemeinen von der nech dem internationalen  t. Veröffertlichung, die gegegne ist, einen Profitationangen bei beziehen der Steren der ist social nicht unter ausgeglichn  Veröffertlichung die veröffertlichungen der Kategorie in Veröffertlichungen der						
Piccharchioner Michaelpridisch (Classificationssystem und Klassificationssymbols)	PRICE OR CORN CORN   CORN CORN	Nach der In	ternationalen Patentidassifikation (IPK) oder nach der nationalen K	assifikation und der IPK			
Recherchierte aber notit zum Mindestprüfstellt gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchterien Gebiete falten	Recherchisets abor notif zum Mindestprüfstott genörende Veröffentlichungen, sowert diese unter die recherchierten Gebiete faben  Willberend der intermationalen Recherche konsuläierte elektronische Daterbank (Name der Daterbank und evd. verwenderte Suchbegriffe)  C. ALS WESENTLICH ANGESEHERE UNTERLAGEN  Kategoner  Bazzeichnung der Veröffentlichunge, sowert erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile  Betrachnung der Veröffentlichungen eind der Forfestzung von Feld C zu  Weiter Anmeil dung erwähnt siehe Ansprüche  A US 2 964 416 A (W. T. GLAB)  13. Dezember 1960  Weiter kannen der bestehen siehe der Forfestzung von Feld C zu  Weiter kannen der bestehen siehe der Forfestzung von Feld C zu  Veröffentlichung der den allgemeinen Stand der Technik dehreint, aber nicht als besonderen bestehen zu lassen, oder ander des des Veröffentlichungen ist der Veröffentlichung der den anderen der Veröffentlichung der den anderen der Veröffentlichung der den anderen der Veröffentlichung der des veröffentlichungs der der veröffentlichung eine der veröffentlichung eine Ausverder erforderen Veröffentlichung eine Ausverderen Veröffentlichung eine Ausverderen der Ve	B. RECHE	RCHIERTE GEBIETE				
Recherchiserte aber nocht zum Mindestprüfstilf gehörunde Vordfrentlichungen, soweit diese unter die recherchiserten Gebeide fallen  Wildhand der Internationalen Recherche konsultilerte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evrit, verwenderte Succhbegriffe)  C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN  Kraegorie  Bezeschnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile  Bezeschnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile  Bezeschnung der Veröffentlichungen eine der Fortastzung von Feld C zu  in der Anmeil dung erwähnt  si ehe Ansprüche  US 2 964 416 A (W. T. GLAB)  13. De zember 1960  **Veröffentlichung, die den allgemeinen Standungen  **A Veröffentlichung die den allgemeinen Standungen  **Anneilderlahm veröffentlich veröffen sich der Fortastzung von Feld C zu  straten in ein Angaben von angegebenen Mankferellichungen  **A Veröffentlichung, die den allgemeinen Standungen  **Anneilderlahm veröffentlich veröffen sich der Fortastzung von Feld C zu  straten in ein Angaben von angegebenen Mankferellichungen  **A Veröffentlichung die soweit werden sich der Fortastzung von Feld C zu  straten veröffentlich veröffentl	Webserv Veröffertlichungen eine der Fortsetzung von Feld C zu   Webserv Veröffertlichungen eine der Deturment des veröffertlichungen eine der Fortsetzung von Feld C zu   Webserv Veröffertlichungen eine der Fortsetzung von Feld C zu   Webserv Veröffertlichungen eine der Fortsetzung von Feld C zu   Webserv Veröffertlichungen eine der Fortsetzung von Feld C zu   Webserv Veröffertlichungen eine der Fortsetzung von Feld C zu   Webserv Veröffertlichungen eine der Fortsetzung von Feld C zu   Webserv Veröffertlichungen eine der Fortsetzung von Feld C zu   Webserv Veröffertlichungen eine der Fortsetzung von Feld C zu   Webserv Veröffertlichungen eine der Fortsetzung von Feld C zu   Webserv Veröffertlichungen eine Berachten eine State veröffertlichungen eine Berachten eine State veröffertlichungen eine Berachten eine State veröffertlichungen der Ammeldedatung eine Mehren veröffertlichungen eine Berachten eine State veröffertlichungen der Veröffertlichungen de			bale )			
Webserv virolfentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C Zu  Weiterv virolfentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C Zu  The Succession von angegebenen Verolfentlichungen  A US 2 964 416 A (W. T. GLAB)  13. De zember 1960  Webserv virolfentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C Zu  The Succession von angegebenen Verolfentlichungen :  A Verolfentlichung, die den alsjemeinen Stand der Technik defriset, aber inricht all beienden in zu zu Versiche die der Succession zu zu versichen verolfentlichungen in zu zu Versichen den der Verolfentlichungen in zu zu Versichen der Such versicht verolfentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C Zu  The Succession Stategoren von angegebenen Verolfentlichungen :  A Verolfentlichung, die den alsjemeinen Stand der Technik derfisert, aber inricht all beienden anzusehen ist und mit der Armeitung nehen in zu zu Versichen die den Geronden befordenden verolfentlichung nehen verolfentlichungen in zu zu Versicht der der Verolfentlichungen verolfentlichung nehen verolfentlichung nehen verolfentlichung nehen verolfentlichung nehen verolfentlichung verolfentlichung verolfentlichung nehen verolfentlichung nehen verolfentlichung nehen verolfentlichung nehen verolfentlichung verolfentli	Without der Internationalen Rischerche konsultierte eiestronische Daterbenk (Name der Daterbenk und evil. verwenderte Suchbegriffe)  C. ALS WESENTLICH ANGESEHERE UNTERLAGEN  Kategorie*  Bezeichnung der Veröffertlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile  Bezeichnung der Veröffertlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile  Bezeichnung der Annahl dung erwähnt.  1 in der Anmel dung erwähnt.  1 in der Anmel dung erwähnt.  1 is eine Ansprüche  A US 2 964 416 A (W. T. GLAB)  1 3. Dezember 1960   Weiten Veröffertlichung die den alsprenienen Stend der Technik derivert, aber nicht als desendarie bedeuten an übenschen an Annahlenstein erwähnen der Veröffertlichung und besondere bedeuten, die benahpstein der Veröffertlichung eine Benatzung, der andere Westfertlichung beitigt werder Veröffertlichung eine Benatzung, der Anhahlenstein und der Veröffertlichung beginnen berühnten der Veröffertlichung eine Benatzung, der Anhahlenstein erwähnen bezieht veröffertlichung eine Benatzung, der Anhahlenstein erwähnen bezieht veröffertlichung eine Benatzung, der Veröffertlichung eine Benatzung der Veröffertlichung ein der veröffertli	11 K U	COON COOD				
Webserv virolfentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C Zu  Weiterv virolfentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C Zu  The Succession von angegebenen Verolfentlichungen  A US 2 964 416 A (W. T. GLAB)  13. De zember 1960  Webserv virolfentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C Zu  The Succession von angegebenen Verolfentlichungen :  A Verolfentlichung, die den alsjemeinen Stand der Technik defriset, aber inricht all beienden in zu zu Versiche die der Succession zu zu versichen verolfentlichungen in zu zu Versichen den der Verolfentlichungen in zu zu Versichen der Such versicht verolfentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C Zu  The Succession Stategoren von angegebenen Verolfentlichungen :  A Verolfentlichung, die den alsjemeinen Stand der Technik derfisert, aber inricht all beienden anzusehen ist und mit der Armeitung nehen in zu zu Versichen die den Geronden befordenden verolfentlichung nehen verolfentlichungen in zu zu Versicht der der Verolfentlichungen verolfentlichung nehen verolfentlichung nehen verolfentlichung nehen verolfentlichung nehen verolfentlichung verolfentlichung verolfentlichung nehen verolfentlichung nehen verolfentlichung nehen verolfentlichung nehen verolfentlichung verolfentli	Without der Internationalen Rischerche konsultierte eiestronische Daterbenk (Name der Daterbenk und evil. verwenderte Suchbegriffe)  C. ALS WESENTLICH ANGESEHERE UNTERLAGEN  Kategorie*  Bezeichnung der Veröffertlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile  Bezeichnung der Veröffertlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile  Bezeichnung der Annahl dung erwähnt.  1 in der Anmel dung erwähnt.  1 in der Anmel dung erwähnt.  1 is eine Ansprüche  A US 2 964 416 A (W. T. GLAB)  1 3. Dezember 1960   Weiten Veröffertlichung die den alsprenienen Stend der Technik derivert, aber nicht als desendarie bedeuten an übenschen an Annahlenstein erwähnen der Veröffertlichung und besondere bedeuten, die benahpstein der Veröffertlichung eine Benatzung, der andere Westfertlichung beitigt werder Veröffertlichung eine Benatzung, der Anhahlenstein und der Veröffertlichung beginnen berühnten der Veröffertlichung eine Benatzung, der Anhahlenstein erwähnen bezieht veröffertlichung eine Benatzung, der Anhahlenstein erwähnen bezieht veröffertlichung eine Benatzung, der Veröffertlichung eine Benatzung der Veröffertlichung ein der veröffertli						
C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN  Kittegorie* Bezeichnung der Veröffertlichung, soweit erforderlich unter Angelbe der in Betracht kommenden Tolle  Bed. Ansprüch Nr.  DE 42 39 749 A (MEISCH H. U.) 1. Juni 1994  in der Anmeldung erwähnt siehe Ansprüche  A US 2 964 416 A (W. T. GLAB)  13. Dezember 1960  "Besonder Kategoren von angegebenen Veröffertlichungen 13. Dezember 1960  "Besonder Kategoren von angegebenen Veröffertlichungen 14. Veröffertlichung, die den alspeniernen Stand der Technik definert. Anmeldestum veröffertlich veröffertlichungsdahm einer andelen unterweiten auf der Schenben der Veröffertlichungsdahm einer andelen unterweiten besonderen Fürze der veröffertlichungsdahm einer andelen in Beründerberberber die unsehn Prinzipation der Schenben sich veröffertlichungsdahm einer andelen in Beründerberberber die das Veröffertlichungsdahm einer andelen in Beründerberber die des Veröffertlichungsdahm einer andelen in Beründerberber des des veröffertlichungs veröffertlichungsdahmen bestehen Präftlichung veröffertlichungsdahmen bestehen Präftlichungsdahmen bestehen veröffertlichungsdahmen bestehen Veröffertlichungs die sich und einer mindlichte Offerbahmen, der veröffertlichungs die sich und einer mindlichte Offerbahmen bestehen Veröffertlichungs die sich und einer mindlichte Offerbahmen bestehen Veröffertlichungs die sich und einer der des des Veröffertlichungs die sich und einer der des des Veröffertlichungs die sich und einer der Offerbahmen bestehen Präftlichungs des des des der einer Maßbahmen bestehen bestehen Präftlichungen in Veröffertlichungs des Bestehen Präftli	C. ALS WESENTUCH ANGESEHENE UNTERLAGEN  Katagorie* Bezeichnung der Veröffertlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile  Det 42 39 749 A. (MEISCH H. U.) 1. Juni 1994  In der Anmeildung erwähnt siehe Ansprüche  A. US 2 964 416 A. (W. T. GLAB)  13. Dezember 1960  Weiters Veröffertlichung den an alsymerien Stand der Fochsetzung von Feeld C zu  Essondien Katagorien von angegebenen Veröffertlichungen  A veröffertlichung, die den alsymerien Stand der Technick delirent, sober mit eile Seenderse bedeutsam anzusehen ist ein der Technick delirent, sober mit ein Seenderse hodelstam anzusehen ist ein Seenderse hodelstam anzusehen ist ein Seenderse hodelstam anzusehen ist "Veröffertlichung, die opeigneit sit einen Prontifiziendstam nieher andersen in Bereicherschreibending mit einer Prontifiziendstam einer andersen in Bereicherschreibending der anzeiben ist der Veröffertlichung den sich auf eine mit einer Anzeiben in Erweichen zu bissen, oder durch die das Veröffertlichungspistalm einer andersen in Bereicherschreibending der anzeiben sich gereichten veröffertlichung den sich auf eine mit einer Anzeiben in Veröffertlichung den sich auf eine mit einer Anzeiben in Veröffertlichung den sich auf eine mit einer Anzeiben in Veröffertlichung den sich auf eine mit einer Anzeiben in Veröffertlichung der anzeiben sich gegen in Veröffertlichung des sich auf eine mit einer Anzeiben veröffertlich werden zu sangelicht veröffertlichung des sich auf eine mit einer Anzeiben sich veröffertlichung des sich auf eine mit einer Erführtliche Offerbending des sich auf eine mit einer Veröffertlichung des sich auf eine mit einer Anzeiben sich veröffertlichen v	Recherchie	rte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen,	sowert diese unter die recherchierten Gebiete	fallen		
C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN  Kittegorie* Bezeichnung der Veröffertlichung, soweit erforderlich unter Angelbe der in Betracht kommenden Tolle  Bed. Ansprüch Nr.  DE 42 39 749 A (MEISCH H. U.) 1. Juni 1994  in der Anmeldung erwähnt siehe Ansprüche  A US 2 964 416 A (W. T. GLAB)  13. Dezember 1960  "Besonder Kategoren von angegebenen Veröffertlichungen 13. Dezember 1960  "Besonder Kategoren von angegebenen Veröffertlichungen 14. Veröffertlichung, die den alspeniernen Stand der Technik definert. Anmeldestum veröffertlich veröffertlichungsdahm einer andelen unterweiten auf der Schenben der Veröffertlichungsdahm einer andelen unterweiten besonderen Fürze der veröffertlichungsdahm einer andelen in Beründerberberber die unsehn Prinzipation der Schenben sich veröffertlichungsdahm einer andelen in Beründerberberber die das Veröffertlichungsdahm einer andelen in Beründerberber die des Veröffertlichungsdahm einer andelen in Beründerberber des des veröffertlichungs veröffertlichungsdahmen bestehen Präftlichung veröffertlichungsdahmen bestehen Präftlichungsdahmen bestehen veröffertlichungsdahmen bestehen Veröffertlichungs die sich und einer mindlichte Offerbahmen, der veröffertlichungs die sich und einer mindlichte Offerbahmen bestehen Veröffertlichungs die sich und einer mindlichte Offerbahmen bestehen Veröffertlichungs die sich und einer der des des Veröffertlichungs die sich und einer der des des Veröffertlichungs die sich und einer der Offerbahmen bestehen Präftlichungs des des des der einer Maßbahmen bestehen bestehen Präftlichungen in Veröffertlichungs des Bestehen Präftli	C. ALS WESENTUCH ANGESEHENE UNTERLAGEN  Katagorie* Bezeichnung der Veröffertlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile  Det 42 39 749 A. (MEISCH H. U.) 1. Juni 1994  In der Anmeildung erwähnt siehe Ansprüche  A. US 2 964 416 A. (W. T. GLAB)  13. Dezember 1960  Weiters Veröffertlichung den an alsymerien Stand der Fochsetzung von Feeld C zu  Essondien Katagorien von angegebenen Veröffertlichungen  A veröffertlichung, die den alsymerien Stand der Technick delirent, sober mit eile Seenderse bedeutsam anzusehen ist ein der Technick delirent, sober mit ein Seenderse hodelstam anzusehen ist ein Seenderse hodelstam anzusehen ist ein Seenderse hodelstam anzusehen ist "Veröffertlichung, die opeigneit sit einen Prontifiziendstam nieher andersen in Bereicherschreibending mit einer Prontifiziendstam einer andersen in Bereicherschreibending der anzeiben ist der Veröffertlichung den sich auf eine mit einer Anzeiben in Erweichen zu bissen, oder durch die das Veröffertlichungspistalm einer andersen in Bereicherschreibending der anzeiben sich gereichten veröffertlichung den sich auf eine mit einer Anzeiben in Veröffertlichung den sich auf eine mit einer Anzeiben in Veröffertlichung den sich auf eine mit einer Anzeiben in Veröffertlichung den sich auf eine mit einer Anzeiben in Veröffertlichung der anzeiben sich gegen in Veröffertlichung des sich auf eine mit einer Anzeiben veröffertlich werden zu sangelicht veröffertlichung des sich auf eine mit einer Anzeiben sich veröffertlichung des sich auf eine mit einer Erführtliche Offerbending des sich auf eine mit einer Veröffertlichung des sich auf eine mit einer Anzeiben sich veröffertlichen v			•			
Weiters Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C.zu   X   Siehe Anhang Patentfamilie	A DE 42 39 749 A (MEISCH H. U.) 1. Juni 1994  In der Anmeldung erwähnt siehe Ansprüche  A US 2 964 416 A (W. T. GLAB)  13. Dezember 1960  Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu  Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu  Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu  Weitere Veröffentlichungen ich zu	Während de	er internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank	Name der Datenbank und evti. verwendete	Suchbegnife)		
Weiters Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C.zu	A DE 42 39 749 A (MEISCH H. U.) 1. Juni 1994  In der Anmeldung erwähnt siehe Ansprüche  A US 2 964 416 A (W. T. GLAB)  13. Dezember 1960  Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu  Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu  Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu  Weitere Veröffentlichungen ich zu						
Weiters Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C.zu   X   Siehe Anhang Patentfamilie	A DE 42 39 749 A (MEISCH H. U.) 1. Juni 1994  In der Anmeldung erwähnt siehe Ansprüche  A US 2 964 416 A (W. T. GLAB)  13. Dezember 1960  Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu  Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu  Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu  Weitere Veröffentlichungen ich zu						
Weiters Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C.zu	A DE 42 39 749 A (MEISCH H. U.) 1. Juni 1994  In der Anmeldung erwähnt siehe Ansprüche  A US 2 964 416 A (W. T. GLAB)  13. Dezember 1960  Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu  Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu  Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu  Weitere Veröffentlichungen ich zu						
Weiters Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C.zu	A DE 42 39 749 A (MEISCH H. U.) 1. Juni 1994  In der Anmeldung erwähnt siehe Ansprüche  A US 2 964 416 A (W. T. GLAB)  13. Dezember 1960  Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu  Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu  Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu  Weitere Veröffentlichungen ich zu						
DE 42 39 749 A (MEISCH H. U.) 1. Juni 1994  in der Anmelddung erwähnt siehe Ansprüche  A US 2 964 416 A (W. T. GLAB) 13. Dezember 1960  Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu  W. Siehe Anhang Patentfarmille  Tennishmen  Besondere Katlegorien von angegebenen Veröffentlichungen: A' Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besondere bedaussam anzusehen ist  Te ditens Dekument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedstam veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedstam veröffentlichung, die pesignet ist, einen Prioritässanspruch zwerfelnat er schwien zu zu sesen oder durch de das Veröffentlichung gelegt werden anderen im Pecherchierbencht genannten Veröffentlichung belegt werden anderen im Pecherchierbencht genannten Veröffentlichung belegt werden ausgelicht veröffentlichung, die ausgenüchte veröffentlichung, die seiner anderen besonderen Dedenburg einer Bendeutung einer Bendeutung veröffentlichung veröffen	DE 42 39 749 A (MEISCH H. U.) 1. Juni 1994  In der Anmei dung erwähnt siehe Ansprüche  US 2 964 416 A (W. T. GLAB)  13. Dezember 1960  Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu  US 2 964 416 A (W. T. GLAB)  13. Dezember 1960  Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu  IN 1994  **Yordfentlichung, die on allgemeinen Stand der Technik doliriert, aber nicht als besondens Podelskaben anzusehen in Anmeidedatum veröffentlicht worden ist   **Yordfentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch werdenlart er anderen Dokument, das jedeghen ist, der angegeben is sesen oder durch werden ist   **Voröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch werden in Anmeidedatum veröffentlicht und angegeben ist des angegeben ist angegeben ist ausgeführ)  OV voröffentlichung, die seinen Prioritätsanspruch werden ist veröffentlichten gedatum einer anderen besonderen Gund angegeben ist einer Prioritätsanspruch werden ist veröffentlichten veröffentl	C. ALS WE	SENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN				
in der Anmeldung erwähnt siehe Ansprüche  Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu  Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu  Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu  Wilderen zu erinehmen  Besondere Kalesporen von angegebenen Veröffentlichungen  Af Veröffentlichung, die geben siehen sit sind der Technik defniert, aber nicht alle besonder bedeutsam anzusehen ist internationalen erinehmen, die gebegehe werden ist veröffentlichung die gebegehe ist, einem Persäffentlichung die sich auf eine müngliche Offenbarung, diese besinspruchte Erfindung zu unsgelichn.  Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die besinspruchte Erfindung zu unsgelichn.  Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die besinspruchte Erfindung zu unsgelichn.  Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die besinspruchte Erfindung zu unsgelichn.  Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die besinspruchte Erfindung zu unsgelichn.  Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die besinspruchte Erfindung zu unsgelichn.  Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die besinspruchte Erfindung zu unsgelichn.  Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die besinspruchte Erfindung zu unsgelichn.  Veröffentlichung die seich auf eine müngliche Offenbarung.  Veröffentlichung die veröffentlich ung eine Persönderer Kategone in Veröffentlichung die Veröffentlichung die des Veröffentlichung die veröffentlich uns nahelbegen ist werden ist zu veröffentlich der uns nahelbegen ist zu den veröffentlich ung nahelbegen die zu der veröffentlich uns nahel	in der Annerduchen  Bus 2 964 416 A (W. T. GLAB)  13. Dezember 1960  Weisen Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu  William Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu  William Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu  William Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu  William Veröffentlichungen sind seine Annerselde State von State veröffentlichungen seine State der Technik definiert, aber nicht als besonders Bedostussam anzusenhen ist der Fortsetzen state veröffentlichungen seine State der Technik derfiniert. Seiner State der Bedostussen sind seine mit der Fortsetzen state veröffentlichungen seine State der Fortsetzen state veröffentlichungen seine State veröffentlichungen seine State veröffentlichungen seine State state veröffentlichungen seine State state veröffentlichungen seine State state seine Promitissen state veröffentlichungen seine State state seine Promitissen state veröffentlichungen seine State state seine Promitissen state veröffentlichungen seine Veröffentlichungen seine Nationalen Fortsetzen Veröffentlichungen seine Nationalen Fortsetzen Veröffentlichungen seine Nationalen Fortsetzen Veröffentlichungen seinen Fortsetzen veröffentlichungen des erbenstellt veröffentlichungen des	Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angal	be der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.		
in der Anmeldung erwähnt siehe Ansprüche  Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu  Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu  Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu  Wilderen zu erinehmen  Besondere Kalesporen von angegebenen Veröffentlichungen  Af Veröffentlichung, die geben siehen sit sind der Technik defniert, aber nicht alle besonder bedeutsam anzusehen ist internationalen erinehmen, die gebegehe werden ist veröffentlichung die gebegehe ist, einem Persäffentlichung die sich auf eine müngliche Offenbarung, diese besinspruchte Erfindung zu unsgelichn.  Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die besinspruchte Erfindung zu unsgelichn.  Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die besinspruchte Erfindung zu unsgelichn.  Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die besinspruchte Erfindung zu unsgelichn.  Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die besinspruchte Erfindung zu unsgelichn.  Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die besinspruchte Erfindung zu unsgelichn.  Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die besinspruchte Erfindung zu unsgelichn.  Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die besinspruchte Erfindung zu unsgelichn.  Veröffentlichung die seich auf eine müngliche Offenbarung.  Veröffentlichung die veröffentlich ung eine Persönderer Kategone in Veröffentlichung die Veröffentlichung die des Veröffentlichung die veröffentlich uns nahelbegen ist werden ist zu veröffentlich der uns nahelbegen ist zu den veröffentlich ung nahelbegen die zu der veröffentlich uns nahel	in der Annerduchen  Bus 2 964 416 A (W. T. GLAB)  13. Dezember 1960  Weisen Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu  William Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu  William Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu  William Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu  William Veröffentlichungen sind seine Annerselde State von State veröffentlichungen seine State der Technik definiert, aber nicht als besonders Bedostussam anzusenhen ist der Fortsetzen state veröffentlichungen seine State der Technik derfiniert. Seiner State der Bedostussen sind seine mit der Fortsetzen state veröffentlichungen seine State der Fortsetzen state veröffentlichungen seine State veröffentlichungen seine State veröffentlichungen seine State state veröffentlichungen seine State state veröffentlichungen seine State state seine Promitissen state veröffentlichungen seine State state seine Promitissen state veröffentlichungen seine State state seine Promitissen state veröffentlichungen seine Veröffentlichungen seine Nationalen Fortsetzen Veröffentlichungen seine Nationalen Fortsetzen Veröffentlichungen seine Nationalen Fortsetzen Veröffentlichungen seinen Fortsetzen veröffentlichungen des erbenstellt veröffentlichungen des						
Siehe Ansprüche  US 2 964 416 A (W. T. GLAB)  13. Dezember 1960  Weitere Veröffentlichungen eind der Fortsetzung von Feld C zu erfinehmen  Besondere Kaltegenen von angegebenen Veröffentlichungen  A Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutstam anzweisen ist internationalen Anmeldedatum veröffentlich worden ist veröffentlichung, die pedignet ist, einen Prioritätsanspruch zwereibant or erschehen zu Jassen, door ann de der Gehnik definiert, veröffentlichung, die pedignet ist, einen Prioritätsanspruch zwereibant or erschehen zu Jassen, door ann die das veröffentlichung des beanspruchte Erfindung zussgeführ)  Veröffentlichung, die abeit auf eine mündliche Offenbarung, eine Benztzung, eine Benztzung, eine Abestzung eine Benztzung, eine Abestzung eine Benztzung eine Anmeldestabum veröffentlichung mit eine mündliche Offenbarung, eine Benztzung, eine Abestzung eine Benztzung eine Abestzung eine Abestzung eine Benztzung eine Abestzung eine Benztzung eine Abestzung eine Benztzung eine Abestzung eine Abestzung eine Benztzung eine Abestzung eine Benztzung eine Abestzung	Siehe Ansprüche  Weitere Veröfentlichungen sind der Fortsatzung von Feld C zu  Weitere Veröfentlichungen sind der Fortsatzung von Feld C zu  Weitere Veröfentlichungen sind der Fortsatzung von Feld C zu  William veröfentlichungen sind der Fortsatzung von Feld C zu  William veröfentlichungen sind der Fortsatzung von Feld C zu  William veröfentlichungen sind der Fortsatzung von Feld C zu  William veröfentlichungen sind der Fortsatzung von Feld C zu  William veröfentlichungen sind der Fortsatzungen sind veröfentlichungen sind	A		Juni 1994	1,5,15,		
Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen  Besonden Kategoren von angegebenen Veröffentlichungen  Te Spätere Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist Teräffentlichung, die genignet ist, einen Prioritätsamen nach dem intermationalen Anmeldedatum veröffentlichter der eine mit des Veröffentlichung, die genignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifehnat er sicheren zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Rechercherbreindt genannten Veröffentlichungsdatum einer soder eine mit einem der den Prioritätsatum veröffentlichte werden ist Veröffentlichung, die gelegten berachte ist veröffentlichungsdatum einer soder einem anderen besonderen Brund angegeben ist (wie ausgelührt)  Veröffentlichung, die sehn auf eine mündliche Offenbarung, eine benaufung, eine benaufung, einer benaufung oder anderen Medinarmen bezieht gelegt werden veröffentlichung in die veröffentlichung von besonderen Erdeutung; die beanspruchte Erfindung vor Veröffentlichung von besonderen Erdeutung; das hauf erfinderscher Tätigkeit beauhend betrachtet werden veröffentlichung eine beauhen dernachtet veröffentlichung eine der mehreren anderen Veröffentlichung ist einen Erfendung stem einer dem erherven anderen Veröffentlichung ist einen Erfindung gebracht wird und diese Veröffentlichung des Mittglied derseben Patentlamfie ist 28/04/1999  Vanne und Postanschnit der Internationalen Rechercherbehörde	Weilere Veröffentlichungen eind der Fortsetzung von Feld C zu innehmen  Besondere Kategoren von angegebenen Veröffentlichungen  A Veröffentlichung, die den aligemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist  T Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeidedatum veröffentlich worden ist und an der Feröffentlichung von besondere Bedeutung; die bearung und der Feröffentlichung von besondere Bedeutung; die bearung und besondere Manneidedatum veröffentlichung von besondere Bedeutung; die bearung und der Feröffentlichung von besondere Bedeutung; die bearung und der Veröffentlichung von besondere Bedeutung; die bearung und veröffentlichung von besondere Bedeutung; die bearung und der Veröffentlichung von besondere Bedeutung; die bearung und der Veröffentlichung von besondere Bedeutung; die bearung und der Veröffentlichung die sich auf die mei der Veröffentlichung der Veröffentlich				16		
Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu erinehmen  *Besondere Kategonen von angegebenen Veröffentlichungen chrischen Februarie der internationalen Anmeidedatum veröffentlicht worden ist Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist er Statere Deutschnet, die jeden het am oder en rach dem internationalen Anmeidedatum veröffentlicht worden ist Veröffentlichung, die genaphen ist, einen Prioritätsanspruch zwerfelnatt er scheren zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen in Rechercherbenderit genannten Veröffentlichungsdatum einer anderen in Rechercherbenderit genannten Veröffentlichungsdatum einer Veröffentlichung die sein auf eine möndliche Öffentlichungsderit ist weite Berutzung, eine Ausstellung oder anderen Neröffentlichung der anderen Desonderen Grund angegeben ist (wie Veröffentlichung, die beit auf eine möndliche Öffentlichungsderit werden veröffentlichung die beanspruchte Erfindung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Werden weren de veröffentlichung die eine Ausstellung von des er der bezugt	Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu  Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu  Besondere Kalegoren von angegebenen Veröffentlichungen:  A' Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besondere Bedeutsan anzusehen ist  Eff. älteres Dokument, das jedoch erst am oder sach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht veröfen sich veröfensche Polatikang veröfensche Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung sin Benzzung, eine Ausstaltung oder andere Maßnahmen beziehen veröfenscher Fälligheit beruhand betrachtet werden sich veröfenschen eine Benzzung, eine Ausstaltung oder andere Maßnahmen beziehen veröfensche veröffensche werden, veröffensche werden veröffensche		siehe Ansprüche				
Weitere Veröffentlichungen eind der Fortsetzung von Feld C zu erinehmen  *Besondere Kategonen von angegebenen Veröffentlichungen einer Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist Te fährers Deukment, die jeden eine mit eine mit eine mit eine mit eine dass Veröffentlichung, die den angegeben ist, einen Prioritätsanspruch zweiehalt er scheren zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Riccenterherbenicht genannten Veröffentlichungsdatum einer anderen im Riccenterherbenicht genannten Veröffentlichungsdatum einer anderen im Riccenterherbenicht genannten Veröffentlichungsdatum einer veröffentlichungsdatum einer den stangepfans ist eine mit eine mit eine mit eine mit einer der Offentlichungsder veröffentlichung die beanspruchte Effindung van Beiner Bedatuung, die beanspruchte Effindung van Beiner Bedatuung die beanspruchte Effindung van Bestenderscher Tätigke beruhend betrachtet werden van die Veröffentlichung die verden mehreren anderen veröffentlichung die verden mehren anderen veröffentlichung die verden mehreren anderen veröffentlichung die verden mehrer anderen veröffentlichung die verden mehrere	Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu  Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu  Besondere Kalegoren von angegebenen Veröffentlichungen:  A' Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besondere Bedeutsan anzusehen ist  Eff. älteres Dokument, das jedoch erst am oder sach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht veröfen sich veröfensche Polatikang veröfensche Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung sin Benzzung, eine Ausstaltung oder andere Maßnahmen beziehen veröfenscher Fälligheit beruhand betrachtet werden sich veröfenschen eine Benzzung, eine Ausstaltung oder andere Maßnahmen beziehen veröfensche veröffensche werden, veröffensche werden veröffensche	A	US 2 964 416 A (W T GLAR)				
Weitere Veröffertlüchungen sind der Fortsetzung von Feld C zu erheitmen  Besondere Kategonen von angegebenen Veröffertlichungen  Af Veröffertlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besondere Bedeutung des debedastam anzusehen ist  Effetter Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldebatam veröffertlicht worden ist und mit der Armektung nicht kollidert, worden ist und mit der Armektung nicht kollidert, worden ist und mit der Armektung nicht kollidert, worden ist und mit der Armektung nicht kollidert worden nicht zu gegeben ist und eine Prioritätsanspruch zweiehalt orsit auf eine Prioritätsanspruch zweiehalt orsit auf eine Bendebatung die beanspruchte Erfindung van besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung van besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung van die eine der der Prioritätsdatum veröffertlicht worden ist veröffertlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung von besonderer Bedeutung; die der zu erforiteitschar von die Veröffertlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung von besonderer Bedeutung; die der zu erforiteitschar von die Veröffertlichung von besonderer Bedeutung; d	Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu ertnehmen  **Pescondene Kategonen von angegebenen Veröffentlichungen zu den abgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besondens bedeitstam anzusenen ist er der Gerinkt definiert, aber nicht als besondens bedeitstam anzusenen ist er diffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätssanspruch zweiehalt er acheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichung statum einer anderen im Rechercherbendrit genannten Veröffentlichung belegt werden so die der der Hügenbernen Prioritätssanspruch zweiehalt er echnik den besenspruch zweiehalt er echnik de seu seinem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie Veröffentlichung de beanspruchte Erfindung soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie Veröffentlichung des aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die beanspruchte Erfindung einer Benatzung, eine Ausstellung oder anderen Medikanhen bestiecht er Veröffentlichung den bezonderer Bedeutung die beanspruchte Erfindung ann nicht als auf erfinderischen Veröffentlichung des veröffentlichung mit einer der mehreren anderen Veröffentlichung der anderen Veröffentlichung mit einer der mehreren anderen Veröffentlichung der seiner der mehreren anderen Veröffentlichung mit einer der mehreren anderen Veröffentlichung des veröffentlichung mit einer der mehren anderen Veröffentlichung mit einer der mehren anderen Veröffentlichung des veröffentlichung mit einer der mehren anderen Veröffen	,	13. Dezember 1960				
Pesondere Kategonen von angegebenen Veröffentlichungen:  Ar Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist anneldedatum veröffentlichtung nicht der Jehr veröffentlichtung die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie aus geine der werden eine Berudzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht Proritätsdatum veröffentlichtung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Berudzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist veröffentlichtung, die wordem intermationalen Recherche  21. April 1999  Name und Postanschnift der Internationalen Recherchenbehörde  Treorie angegeben ist name veröffentlichtung dieser Veröffentlichtung, die beanspruchte Erfindung van auf eine dedutung; die beanspruchte Erfindung van dieser Veröffentlichtung die beruhend betrachtet werden entircht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden veröffentlichtung eine deutung; die beanspruchte Erfindung van dieser Veröffentlichung dieser Veröffentlichung dieser Veröffentlichung dieser Veröffentlichung die verdem ist veröffentlichung die vordem intermationalen Recherchenberichts verden ist veröffentlichung die verdem Tätigkeit beruhend betrachtet werden veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung van dieser Kategone in Veröffentlichung dieser Veröffentlichung die verdem Tätigkeit beruhend betrachtet werden veröffentlichung dieser Kategone in Ve	Besondere Kategorien von angegebenen Veröftentlichungen:  A* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist der nicht als einen Deutscht worden ist der nicht als n						
Pesondere Kategonen von angegebenen Veröffentlichungen:  Ar Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist anneldedatum veröffentlichtung nicht der Jehr veröffentlichtung die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie aus geine der werden eine Berudzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht Proritätsdatum veröffentlichtung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Berudzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist veröffentlichtung, die wordem intermationalen Recherche  21. April 1999  Name und Postanschnift der Internationalen Recherchenbehörde  Treorie angegeben ist name veröffentlichtung dieser Veröffentlichtung, die beanspruchte Erfindung van auf eine dedutung; die beanspruchte Erfindung van dieser Veröffentlichtung die beruhend betrachtet werden entircht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden veröffentlichtung eine deutung; die beanspruchte Erfindung van dieser Veröffentlichung dieser Veröffentlichung dieser Veröffentlichung dieser Veröffentlichung die verdem ist veröffentlichung die vordem intermationalen Recherchenberichts verden ist veröffentlichung die verdem Tätigkeit beruhend betrachtet werden veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung van dieser Kategone in Veröffentlichung dieser Veröffentlichung die verdem Tätigkeit beruhend betrachtet werden veröffentlichung dieser Kategone in Ve	Besondere Kategorien von angegebenen Veröftentlichungen:  A* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist der nicht als einen Deutscht worden ist der nicht als n						
Pesondere Kategonen von angegebenen Veröffentlichungen:  Ar Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist anneldedatum veröffentlichtung nicht der Jehr veröffentlichtung die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie aus geine der werden eine Berudzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht Proritätsdatum veröffentlichtung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Berudzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist veröffentlichtung, die wordem intermationalen Recherche  21. April 1999  Name und Postanschnift der Internationalen Recherchenbehörde  Treorie angegeben ist name veröffentlichtung dieser Veröffentlichtung, die beanspruchte Erfindung van auf eine dedutung; die beanspruchte Erfindung van dieser Veröffentlichtung die beruhend betrachtet werden entircht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden veröffentlichtung eine deutung; die beanspruchte Erfindung van dieser Veröffentlichung dieser Veröffentlichung dieser Veröffentlichung dieser Veröffentlichung die verdem ist veröffentlichung die vordem intermationalen Recherchenberichts verden ist veröffentlichung die verdem Tätigkeit beruhend betrachtet werden veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung van dieser Kategone in Veröffentlichung dieser Veröffentlichung die verdem Tätigkeit beruhend betrachtet werden veröffentlichung dieser Kategone in Ve	Besondere Kategorien von angegebenen Veröftentlichungen:  A* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist der nicht als einen Deutscht worden ist der nicht als n						
Pesondere Kategonen von angegebenen Veröffentlichungen:  Ar Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist anneldedatum veröffentlichtung nicht der Schalten veröffentlichtung nicht der Schalten veröffentlichtung nicht der Schalten veröffentlichtung nicht der Schalten veröffentlichtung die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie aus geinen mit ermationalen Anmeldedatum veröffentlichtung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie aus geine Berudzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist  Datum des Abschlusses der internationalen Recherche  21. April 1999  Name und Postanschnift der Internationalen Recherchenbehörde  To Spätere Veröffentlichtung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlichtung aug und dieser Veröffentlichtung; die beanspruchte Erfindung van ausgeführt)  To Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung van ausgeführt)  Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung van dieser Veröffentlichung die	Besondere Kategorien von angegebenen Veröftentlichungen:  A* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist der nicht als einen Deutscht worden ist der nicht als n						
Pesondere Kategonen von angegebenen Veröffentlichungen:  Ar Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist anneldedatum veröffentlichtung nicht der Schalten veröffentlichtung nicht der Schalten veröffentlichtung nicht der Schalten veröffentlichtung nicht der Schalten veröffentlichtung die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie aus geinen mit ermationalen Anmeldedatum veröffentlichtung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie aus geine Berudzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist  Datum des Abschlusses der internationalen Recherche  21. April 1999  Name und Postanschnift der Internationalen Recherchenbehörde  To Spätere Veröffentlichtung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlichtung aug und dieser Veröffentlichtung; die beanspruchte Erfindung van ausgeführt)  To Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung van ausgeführt)  Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung van dieser Veröffentlichung die	Besondere Kategorien von angegebenen Veröftentlichungen:  A* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist der nicht als einen Deutscht worden ist der nicht als n				•		
Pesondere Kategonen von angegebenen Veröffentlichungen:  Ar Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist anneldedatum veröffentlichtung nicht der Schalten veröffentlichtung nicht der Schalten veröffentlichtung nicht der Schalten veröffentlichtung nicht der Schalten veröffentlichtung die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie aus geinen mit ermationalen Anmeldedatum veröffentlichtung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie aus geine Berudzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist  Datum des Abschlusses der internationalen Recherche  21. April 1999  Name und Postanschnift der Internationalen Recherchenbehörde  To Spätere Veröffentlichtung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlichtung aug und dieser Veröffentlichtung; die beanspruchte Erfindung van ausgeführt)  To Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung van ausgeführt)  Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung van dieser Veröffentlichung die	Besondere Kategorien von angegebenen Veröftentlichungen:  A* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist der nicht als einen Deutscht worden ist der nicht als n		•	·			
Pesondere Kategonen von angegebenen Veröffentlichungen:  Ar Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist anneldedatum veröffentlichtung nicht der Schalten veröffentlichtung nicht der Schalten veröffentlichtung nicht der Schalten veröffentlichtung nicht der Schalten veröffentlichtung die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie aus geinen mit ermationalen Anmeldedatum veröffentlichtung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie aus geine Berudzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist  Datum des Abschlusses der internationalen Recherche  21. April 1999  Name und Postanschnift der Internationalen Recherchenbehörde  To Spätere Veröffentlichtung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlichtung aug und dieser Veröffentlichtung; die beanspruchte Erfindung van ausgeführt)  To Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung van ausgeführt)  Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung van dieser Veröffentlichung die	Besondere Kategorien von angegebenen Veröftentlichungen:  A* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist der nicht als einen Deutscht worden ist der nicht als n						
Pesondere Kategonen von angegebenen Veröffentlichungen:  Ar Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist anneldedatum veröffentlichtung nicht des besonders bedeutsam anzusehen ist Armeikung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständris des der Armeikung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständris des der Armeikung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständris des der Erfindung zugrundellegenden Prinzips oder der ihr zugrundellegenden Armeikung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständris des der Erfindung zugrundellegenden Prinzips oder der ihr zugrundellegenden Tweritentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhalt erschenen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichung sein das veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung soll oder die aus einem anderen Grund angegeben ist (wie aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie aus einem mündliche Offenbarung, eine Berudzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht ernech dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlichung, die vor dem internationalen Armeikung der einer Artenden veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung von desonderer Bedeutung; die beanspruchte errinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte errinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte erfindung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte erfindung ter interiersche Tätigkeit beruhend betrachtet werden veröffentlichung die se Veröffentlichung die ver Kententlichung die sein auf einer Kategorie in Veröffentlichung die vor dem internationalen Fecherche	Besondere Kategorien von angegebenen Veröftentlichungen:  A* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist der nicht als einen Deutscht worden ist der nicht als n	i					
Pesondere Kategonen von angegebenen Veröffentlichungen:  Ar Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist anneldedatum veröffentlichtung nicht der Schalten veröffentlichtung nicht der Schalten veröffentlichtung nicht der Schalten veröffentlichtung nicht der Schalten veröffentlichtung die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie aus geinen mit ermationalen Anmeldedatum veröffentlichtung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie aus geine Berudzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist  Datum des Abschlusses der internationalen Recherche  21. April 1999  Name und Postanschnift der Internationalen Recherchenbehörde  To Spätere Veröffentlichtung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlichtung aug und dieser Veröffentlichtung; die beanspruchte Erfindung van ausgeführt)  To Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung van ausgeführt)  Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung van dieser Veröffentlichung die	Besondere Kategorien von angegebenen Veröftentlichungen:  A* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist der nicht als einen Deutscht worden ist der nicht als n	l					
Pesondere Kategonen von angegebenen Veröffentlichungen:  Ar Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist anneldedatum veröffentlichtung nicht des besonders bedeutsam anzusehen ist Armeikung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständris des der Armeikung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständris des der Armeikung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständris des der Erfindung zugrundellegenden Prinzips oder der ihr zugrundellegenden Armeikung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständris des der Erfindung zugrundellegenden Prinzips oder der ihr zugrundellegenden Tweritentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhalt erschenen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichung sein das veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung soll oder die aus einem anderen Grund angegeben ist (wie aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie aus einem mündliche Offenbarung, eine Berudzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht ernech dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlichung, die vor dem internationalen Armeikung der einer Artenden veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung von desonderer Bedeutung; die beanspruchte errinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte errinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte erfindung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte erfindung ter interiersche Tätigkeit beruhend betrachtet werden veröffentlichung die se Veröffentlichung die ver Kententlichung die sein auf einer Kategorie in Veröffentlichung die vor dem internationalen Fecherche	Besondere Kategorien von angegebenen Veröftentlichungen:  A* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist der nicht als einen Deutscht worden ist der nicht als n	. [					
Pesondere Kategonen von angegebenen Veröffentlichungen:  Ar Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist anneldedatum veröffentlichtung nicht der Schalten veröffentlichtung nicht der Schalten veröffentlichtung nicht der Schalten veröffentlichtung nicht der Schalten veröffentlichtung die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie aus geinen mit ermationalen Anmeldedatum veröffentlichtung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie aus geine Berudzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist  Datum des Abschlusses der internationalen Recherche  21. April 1999  Name und Postanschnift der Internationalen Recherchenbehörde  To Spätere Veröffentlichtung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlichtung aug und dieser Veröffentlichtung; die beanspruchte Erfindung van ausgeführt)  To Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung van ausgeführt)  Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung van dieser Veröffentlichung die	Besondere Kategorien von angegebenen Veröftentlichungen:  A* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist der nicht als einen Deutscht worden ist der nicht als n			·			
Pesondere Kategonen von angegebenen Veröffentlichungen:  Ar Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist anneldedatum veröffentlichtung nicht des besonders bedeutsam anzusehen ist Armeikung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständris des der Armeikung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständris des der Armeikung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständris des der Erfindung zugrundellegenden Prinzips oder der ihr zugrundellegenden Armeikung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständris des der Erfindung zugrundellegenden Prinzips oder der ihr zugrundellegenden Tweritentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhalt erschenen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichung sein das veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung soll oder die aus einem anderen Grund angegeben ist (wie aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie aus einem mündliche Offenbarung, eine Berudzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht ernech dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlichung, die vor dem internationalen Armeikung der einer Artenden veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung von desonderer Bedeutung; die beanspruchte errinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte errinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte erfindung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte erfindung ter interiersche Tätigkeit beruhend betrachtet werden veröffentlichung die se Veröffentlichung die ver Kententlichung die sein auf einer Kategorie in Veröffentlichung die vor dem internationalen Fecherche	Besondere Kategorien von angegebenen Veröftentlichungen:  A* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist der nicht als einen Deutscht worden ist der nicht als n						
A veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist and mit der Anmeldedatum veröffentlicht worden ist and mit der Anmeldedatum veröffentlichtung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung soll oder die aus einem anderen Veröffentlichtung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte werden veröffentlichtung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte werden veröffentlichtung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte berühende betrachte werden veröffentlichtung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte berühen besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte berühen betrachte werden vor öffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte berühen besonderer Bedeutung; die beanspruchte berühen der het internationale betrachte werden vor öffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte vor öffentlichung von besonderer Bedeutung; die bean	A Veröffentlichung, die den aligemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonderen bedeutsam anzusehen ist aber nicht als besonderen bedeutsam anzusehen ist and mit der Armektdeatum veröffentlicht worden ist and mit der Armektdeatum veröffentlicht des Veröffentlichung veröffentlichtung veröffentlichtung die beanspruchte Erfindung scheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichtung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung soll oder die aus einem anderen Veröffentlichtung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte veröfentlichtung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte veröfentlichtung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung soll oder die aus einem anderen bezieht (wie ausgeführt)  O' Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist veröffentlichung, die vor dem internationalen Armektdeatum, aber nach des Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichung die erschene Patentlamite ist veröffentlichung, die Mitglied derseiben Patentlamite ist veröffentlichung die ser kteropen in veröffentlichung die ser	Weite	ore Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu	X Siehe Anhang Patentfamilie			
A veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist and mit der Anmeldedatum veröffentlicht worden ist and mit der Anmeldedatum veröffentlichtung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung soll oder die aus einem anderen Veröffentlichtung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte werden veröffentlichtung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte werden veröffentlichtung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte berühende betrachte werden veröffentlichtung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte berühen besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte berühen betrachte werden vor öffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte berühen besonderer Bedeutung; die beanspruchte berühen der het internationale betrachte werden vor öffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte vor öffentlichung von besonderer Bedeutung; die bean	A Veröffentlichung, die den aligemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonderen bedeutsam anzusehen ist aber nicht als besonderen bedeutsam anzusehen ist and mit der Armektdeatum veröffentlicht worden ist and mit der Armektdeatum veröffentlicht des Veröffentlichung veröffentlichtung veröffentlichtung die beanspruchte Erfindung scheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichtung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung soll oder die aus einem anderen Veröffentlichtung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte veröfentlichtung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte veröfentlichtung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung soll oder die aus einem anderen bezieht (wie ausgeführt)  O' Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist veröffentlichung, die vor dem internationalen Armektdeatum, aber nach des Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichung die erschene Patentlamite ist veröffentlichung, die Mitglied derseiben Patentlamite ist veröffentlichung die ser kteropen in veröffentlichung die ser						
E* ålteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist  1. Veröffentlichtung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweiselhaft erschienen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichtungsdatum einer anderen im Recherchenbenicht genannten Veröffentlichtung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie aus geführt)  1. Veröffentlichtung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Berutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht P. Veröffentlichtung, die vor dem internationalen Armeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist  21. April 1999  Name und Postanschnift der Internationalen Recherchenbehörde  Erifindung zugrundellegenden Thropie angegeben ist (**  "X' Veröffentlichtung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung enfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtel werden veröffentlichtung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Befinderischer Tätigkeit beruhend betrachtel werden veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte veröffentlichung derinderischer Tätigkeit beruhend betrachtel werden veröffentlichung die Bedeutung; die beanspruchte veröffentlichung von besonderer Bedeutung; derinderischer Tätigkeit beruhend betrachtel werden veröffentlichung die Bedeutung; die beanspruchte veröffentlichung dies	E* ålteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist  L' Veröffentlichtung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft er scheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichtung statum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichtung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)  O' Veröffentlichtung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder anderen Maßnahmen bezieht eine Benutzung, eine Ausstellung oder anderen Maßnahmen bezieht dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist  21. April 1999  Name und Postanschnft der Internationalen Recherchenbehörde  Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentiaan 2  NL - 2280 HV Rijswijk  Tel. (-31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,	"A" Veröffen aber nic	tlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, :ht als besonders bedeutsam anzusehen ist	Anmeidung nicht kollidiert, sondern nur	zum Verständnis des der		
number of the statement	L.* Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Rachercherbeindit genannten Veröffentlichung beigt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)  O' Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Ausstelltung oder andere Maßnahmen bezieht Proffentlichung, die vor dem intermationalen Armeldedatum, aber nach dam beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlichung, die vor dem intermationalen Armeldedatum, aber nach dam beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlichung, die vor dem intermationalen Recherche  21. April 1999  Name und Postanschnft der Internationalen Recherchenbehörde  Europäisches Patentaamt, P.B. 5818 Patentiaan 2  NL - 2280 HV Rijswijk  Tel. (-31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,	"E" álteres C	Ookument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen	Theorie angegeben ist	· · · I		
anderen im Rechercherbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen Brund angegeben ist (wie ausgeführt)  O' Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht Veröffentlichung, die vor dem internationalen Armeidedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist  Datum des Abschlusses der internationalen Recherche  21. April 1999  Name und Postanschnift der Internationalen Recherchenbehörde  Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategone in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist  "a" Veröffentlichung, die Mitglied derseben Patentlamilie ist  Absendedatum des internationalen Recherchenberichts  28/04/1999  Bevollmächtigter Bediensteter	anderen im Rechercherbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)  O' Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht Veröffentlichung, die vor dem internationalen Armeidedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist  21. April 1999  Vame und Postanschnft der Internationalen Recherchenbehörde  Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentiaan 2 NL -2280 HV Rijswijk Tel. (-31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,	"L" Veröffen	tlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft er-	kann allein aufgrund dieser Veröffentlich	nung nicht als neu oder auf		
ausgeführt) Or Veröffertlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Berutzung, eine Ausstelltung oder andere Maßnahmen bezieht Veröffertlichung, die vor dem internationalen Armeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffertlicht worden ist  Datum des Abschtusses der internationalen Recherche  21. April 1999  Name und Postanschnift der Internationalen Recherchenbehörde  Rauf nicht als auf erfinderscher Tätigkeit berunden dem kann nicht als auf erfinderscher Tätigkeit berunden iner oder mehreren anderen veröffentlichung die ser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheiligend ist "a "Veröffentlichung, die Mitglied derseben Patentlamitie ist  Absendedatum des internationalen Recherchenberichts  28/04/1999  Bevollmächtigter Bediensteter	ausgeführt) O' Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Beruzzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht P' Veröffentlichung, die vor dem internationalen Armeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist  21. April 1999  Vanne und Postanschnift der Internationalen Recherchenbehörde  Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentiaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (-431-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,	anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden zur Veröffentlich und und bezondung die bezo					
overoiteritating die sich auf eine mundiche Orienbarung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht P* Veröffentlichung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist "a" Veröffentlichung, die Mitglied derseiben Patentlamilie ist Datum des Abschtusses der internationalen Recherche  21. April 1999  Name und Postanschnift der Internationalen Recherchenbehörde  Bevollmächtigter Bediensteter	overtrieffentlichung, die aus eine mundiche Offenbarung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht P* Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist ** Veröffentlichung, die Mittglied derseiben Patentlamitie ist ** Datum des Abschtusses der internationalen Recherche ** Absendedatum des internationalen Recherchenberichts ** 21. April 1999 ** 28/04/1999 ** Same und Postanschnift der Internationalen Recherchenbehörde ** Europäisches Patentlamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 ** NL - 2280 HV Rijswijk ** Tel. (-431-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, ** Mannet Leifentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist ** Veröffentlichung, die Mittglied derseiben Patentlamitie ist ** Absendedatum des internationalen Recherchenberichts ** Datum der Internationalen Recherchenberichts ** Datum des intern	ausgefü	ausgeführt) kann nicht als auf ertindenschier i attigkeit Derunend Detrachter kann nicht als auf ertindenschier i attigkeit Derunend Detrachter kann nicht als auf ertindenschier i attigkeit Derunend Detrachter kann nicht als auf ertindenschier i attigkeit Derunend Detrachter kann nicht als auf ertindenschier i attigkeit Derunend Detrachter kann nicht als auf ertindenschier i attigkeit Derunend Detrachter kann nicht als auf ertindenschier i attigkeit Derunend Detrachter kann nicht als auf ertindenschier i attigkeit Derunend Detrachter kann nicht als auf ertindenschier i attigkeit Derunend Detrachter kann nicht als auf ertindenschier i attigkeit Derunend Detrachter kann nicht als auf ertindenschier i attigkeit Derunend Detrachter kann nicht als auf ertindenschier kann nicht ausgebier kann nicht ausgeb				
Perconstructung, die vor dem internationalen Armekledatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist  2aturn des Abschtusses der internationalen Recherche  21. April 1999  Name und Postanschmit der Internationalen Recherchenbehörde  28/04/1999  Bevollmächtigter Bediensteter	Provercientischung, die vor dem internationalen Armeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffertlicht worden ist  21. April 1999  22. April 1999  Name und Postanschmit der Internationalen Recherchenbehörde  Europäisches Patentarmt, P.B. 5818 Patentiaan 2  NL - 2280 HV Rijswijk  Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,	eine Be	nutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht	Veröffentlichungen dieser Kategorie in \	erbindung gebracht wird und		
21. April 1999 28/04/1999 Name und Postanschmit der Internationalen Recherchenbehörde Bevollmächtigter Bediensteter	21. April 1999  Name und Postanschmit der Internationalen Recherchenbehörde  Europäisches Patentamit, P.B. 5818 Patentiaan 2  NL - 2280 HV Rijswijk  Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,	"P" Veröffen	tiichung, die vor dem internationalen. Anmeldedatum, aber nach		T		
Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Bevollmächtigter Bediensteter	Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Bevollmächtigter Bediensteter  Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentiaan 2  NL - 2280 HV Rijswijk  Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,			Absendedatum des internationalen Rec	herchenberichts		
Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Bevollmächtigter Bediensteter	Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Bevollmächtigter Bediensteter  Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentiaan 2  NL - 2280 HV Rijswijk  Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,	01 100					
	Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentiaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Mazot I E	21	. April 1999	28/04/1999			
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentiaan 2	NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Mazot I E	Name und Po		Bevollmächtigter Bediensteter			
NL - 2280 HV Rijswijk	Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo ni, Marcet IE		NL - 2280 HV Rijswijk				
				Mazet, J-F			

### INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

PCT/DE 98/03504

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument		Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
DE 4239749	Α	01-06-1994	KEINE	
US 2964416	Α	13-12-1960	KEINE	